

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年4月5日 (05.04.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/23069 A1

(51) 国際特許分類:

B01D 39/20

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): イビデン株式会社 (IBIDEN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒503-8604 岐阜県大垣市神田町二丁目1番地 Gifu (JP).

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/06599

(22) 国際出願日:

2000年9月26日 (26.09.2000)

(72) 発明者: および  
(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 大野一茂 (OHNO, Kazushige) [JP/JP]. 島戸幸二 (SHIMATO, Koji) [JP/JP]. 辻 昌宏 (TSUJI, Masahiro) [JP/JP]; 〒501-0695 岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1の1 イビデン株式会社 大垣北工場内 Gifu (JP).

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(74) 代理人: 恩田博宣 (ONDA, Hironori); 〒500-8731 岐阜県岐阜市大宮町2丁目12番地の1 Gifu (JP).

(30) 優先権データ:

特願平11/277432

1999年9月29日 (29.09.1999) JP

特願平11/277123

1999年9月29日 (29.09.1999) JP

特願平11/277119

1999年9月29日 (29.09.1999) JP

特願平11/277122

1999年9月29日 (29.09.1999) JP

特願平11/279866

1999年9月30日 (30.09.1999) JP

特願平11/278405

1999年9月30日 (30.09.1999) JP

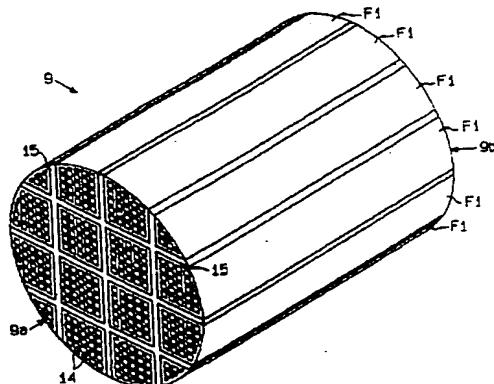
(81) 指定国(国内): KR, US.

(84) 指定国(広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

[続葉有]

(54) Title: HONEYCOMB FILTER AND CERAMIC FILTER ASSEMBLY

(54) 発明の名称: ハニカムフィルタ及びセラミックフィルタ集合体



(57) Abstract: A ceramic filter assembly (9) which is enhanced in exhaust gas treating efficiency, and which is integrated by bonding together via ceramic seal material layers (15) the outer peripheral surfaces of a plurality of filters (F1) each consisting of a porous ceramic sintered body, the seal material layer (15) having a thickness of 0.3 mm to 3 mm and a thermal conductivity of 0.1 W/mK to 10 W/mK.

(57) 要約:

WO 01/23069 A1  
排気ガスの処理効率が向上されたセラミックフィルタ集合体。セラミックフィルタ集合体 (9) は、各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタ (F1) の外周面をセラミック質シール材層 (15) を介して接着することにより一体化されたものである。シール材層 (15) は、0.3 mm ~ 3 mm の厚さを有し、かつ 0.1 W/mK ~ 10 W/mK の熱伝導率を有している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)



添付公開書類:  
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドンスノート」を参照。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 明細書

## ハニカムフィルタ及びセラミックフィルタ集合体

## 技術分野

本発明は、ハニカムフィルタ及びセラミックフィルタ集合体に関し、詳しくは、セラミック焼結体からなるハニカムフィルタ及び、複数のハニカムフィルタを接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体に関する。

## 背景技術

自動車の台数は今世紀に入って飛躍的に増加しており、それに比例して自動車の内燃機関から出される排気ガスの量も急激な増加の一途を辿っている。特にディーゼルエンジンの出す排気ガス中に含まれる種々の物質は、汚染を引き起こす原因となるため、現在では世界環境にとって深刻な影響を与えつつある。また、最近では排気ガス中の微粒子（ディーゼルパーティキュレート）が、ときとしてアレルギー障害や精子数の減少を引き起こす原因となるとの研究結果も報告されており。つまり、排気ガス中の微粒子を除去する対策を講じることが、人類にとって急務の課題であると考えられている。

このような事情のもと、従来より、多種の排気ガス浄化装置が提案されている。一般的な排気ガス浄化装置は、エンジンの排気マニホールドに連結された排気管の途上に設けられたケーシングと、その中に配置され、微細な孔を有するフィルタとを有している。フィルタの形成材料としては、金属や合金のほか、セラミックがある。セラミックからなるフィルタの代表例としては、コーディエライト製のハニカムフィルタが知られている。最近では、耐熱性・機械的強度・捕集効率が高い、化学的に安定している、圧力損失が小さい等の利点を有する多孔質炭化珪素焼結体がフィルタ形成材料として用いられることが多い。

ここで「圧力損失」とは、フィルタ上流側の圧力値から下流側の圧力値を引いたものである。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

たものをいう。排気ガスがフィルタを通過する際に抵抗を受けることが、圧力損失をもたらす最大の要因である。

ハニカムフィルタは自身の軸線方向に沿って延びる多数のセルを有している。排気ガスがフィルタを通り抜ける際、そのセル壁によって微粒子がトラップされる。その結果、排気ガス中から微粒子が除去される。

しかし、多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタは熱衝撃に弱い。そのため、大型化するほどフィルタにクラックが生じやすくなる。よって、クラックによる破損を避ける手段として、複数の小さなフィルタ個片を一体化して1つの大きなセラミックフィルタ集合体を製造する技術が近年提案されている。

セラミックフィルタ集合体の一般的な製造方法を簡単に紹介する。まず、押出成形機の金型を用いてセラミック原料を連続的に押し出すことにより、四角柱状のハニカム成形体を形成する。ハニカム成形体を等しい長さに切断した後、その切断片を焼成してフィルタとする。焼成工程の後、各フィルタの外周面同士を4～5mm厚のセラミック質シール材層を介して接着することにより、複数のフィルタを束ねて一体化する。以上の結果、所望のセラミックフィルタ集合体が完成する。

セラミックフィルタ集合体の外周面には、セラミックファイバ等からなるマット状の断熱材が巻き付けられる。この状態で、集合体は排気管の途上に設けられたケーシング内に収容される。

ところが、従来技術では、セラミックフィルタ集合体内にトラップされた微粒子が完全に焼失せず、部分的に燃え残りが生じやすいという問題があった。従つて、排気ガスを処理する効率が悪かった。

又、従来技術のハニカムフィルタは全体的に角張った形状をしているため、外周面における角部に応力が集中しやすく、そこに欠け（チッピング）が生じることもあった。また、角部を起点としてシール材層側にクラックが発生することもあり、それが原因でセラミックフィルタ集合体が破壊に至るおそれがあった。また、集合体の破壊に至らない場合であっても、排気ガスのリークによって処理効

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

率が低下しやすいという問題があった。

又、フィルタ集合体の使用時に個々のハニカムフィルタ内に少なからず温度差が生じて、その結果、熱応力によってハニカムフィルタにクラックが発生し、集合体が破壊に至ることがしばしばあった。よって、ハニカムフィルタ集合体の強度向上を達成するためには、個々のハニカムフィルタの強度を向上させる必要がある。

更に、従来のセラミックフィルタ集合体は、全体として断面矩形状を呈しており、このような集合体の外形をカットすることにより、全体として断面略円形状または断面略楕円形状に形成することも行われている。

しかしながら、フィルタは多数のセルを有しているため、集合体の外形カットを行うと、カット後の集合体の外周面にセル壁が剥き出しになり、結果として外周面に凹凸ができる。従って、集合体を外周面に設けられた断熱材とともにケーシング内に収容しても、フィルタ長手方向に沿って隙間が生じる。このため、その隙間を介して排気ガスがリークしやすくなり、排気ガスの処理効率が低下するという問題があった。

ハニカムフィルタによって捕集されたディーゼルパーティキュレートにおいて、粒子径の小さなパーティキュレートは肺への定着率が高く健康に対するリスクが高いことが判明している。よって、小さな粒子径のパーティキュレートを補足することに対する要求は高くなっている。

ところが、ハニカムフィルタの気孔径、気孔率が小さいと、ハニカムフィルタが緻密になりすぎてしまい、排気ガスがハニカムフィルタをスムーズに通過しにくくなり、圧力損失が大きくなる。又、セル壁を構成する粒子の比表面積が小さくとなり、ハニカムフィルタが緻密になりすぎてしまい、排気ガスがハニカムフィルタをスムーズに通過しにくくなり、圧力損失が大きくなる。従って、車両の運転条件を妨げ、燃費の悪化、運転フィーリングの悪化を招くという問題がある。

反対に、気孔径、気孔率が大きいと、上記のような問題は解決される。しかし、ハニカムフィルタ中に空隙が多くなりすぎてしまうため、細かい微粒子を捕集

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

することができなくなる。そのため、捕集効率が低下してしまうとともに、ハニカムフィルタの機械的強度が弱くなるという問題がある。

本発明の第一の目的は、排気ガスの処理効率が向上されたセラミックフィルタ集合体を提供することにある。

本発明の第二の目的は、強度に優れたセラミックフィルタ集合体を提供することにある。

本発明の第三の目的は、外周面における流体のリークを防止するセラミックフィルタ集合体を提供することにある。

本発明の第四の目的は、圧力損失が小さくかつ機械的強度に優れたハニカムフィルタを提供することにある。

#### 発明の開示

本発明の第一の態様によれば、各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体が提供される。前記シール材層は、0.3mm～3mmの厚さを有し、かつ0.1W/mK～10W/mKの熱伝導率を有している。

本発明の第二の態様によれば、各々がセラミック焼結体からなる複数の角柱状ハニカムフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体が提供される。各ハニカムフィルタの外周面における角部は、面取りが施されたアール面を有し、そのアール面は0.3～2.5の曲率Rを有する。

本発明の第三の態様によれば、各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体が提供される。セラミックフィルタ集合体は、全体として断面略円形状または断面略橿円形状を有する集合体の外周面に形成され、セラミック質からなる凹凸解消層を備える。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

本発明の第四の態様によれば、各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数の柱状ハニカムフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体が提供される。被処理流体の流れ方向に沿ったフィルタ長さLと、その流れ方向に対して直交する方向におけるフィルタ断面積Sとの比L/Sが、 $0.06 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.75 \text{ mm/mm}^2$ に設定されている。

本発明の第五の態様によれば、各々がセル壁によって区画された複数のセルを有し、前記セル壁によってパティキュレートを含む流体を浄化する複数のハニカムフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたハニカムフィルタ集合体が提供される。セル壁を構成する粒子の比表面積は、 $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上に設定されている。

本発明の第六の態様によれば、多孔質セラミック焼結体からなる柱状ハニカムフィルタが提供される。被処理流体の流れ方向に沿ったフィルタ長さLと、その流れ方向に対して直交する方向におけるフィルタ断面積Sとの比L/Sが、 $0.06 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.75 \text{ mm/mm}^2$ に設定されている。

本発明の第七の態様によれば、多孔質セラミック焼結体からなるハニカムフィルタが提供される。ハニカムフィルタの平均気孔径が $5 \sim 15 \mu\text{m}$ で、平均気孔率が $30 \sim 50\%$ であり、ハニカムフィルタは $20\%$ 以上の貫通気孔を有する。

本発明の第八の態様によれば、セル壁によって区画された複数のセルを有し、セル壁によってパティキュレートを含む流体を浄化するハニカムフィルタが提供される。セル壁を構成する粒子の比表面積が $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上に設定されている。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明の第一実施形態の排気ガス浄化装置の概略図。

図2は、図1の排気ガス浄化装置のセラミックフィルタ集合体の斜視図。

図3は、図2のセラミックフィルタ集合体のハニカムフィルタの斜視図。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

図4は、図1の排気ガス浄化装置の要部拡大断面図。

図5は、図2のセラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

図6は、第一の変形例のセラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

図7は、本発明の第二実施形態のハニカムフィルタの斜視図。

図8は、セラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

図9は、第一の変形例のセラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

図10は、第一の変形例のハニカムフィルタの斜視図。

図11は、第二の変形例のハニカムフィルタの斜視図。

図12は、第三の変形例のハニカムフィルタの斜視図。

図13は、本発明の第三実施形態のセラミックフィルタ集合体の側面図。

図14 (a) ~図14 (c) は図13のセラミックフィルタ集合体の製造工程を説明するための概略斜視図。

図15は、変形例のセラミックフィルタ集合体の側面図。

図16は、本発明の第四実施形態のセラミックフィルタ集合体の斜視図。

図17は、図16のセラミックフィルタ集合体3のフィルタの斜視図。

図18 (a) は、図17のフィルタの概略的な断面図、図18 (b) は図17のフィルタの概略的な側面図。

図19は、本発明の第五及び第六実施形態のハニカム構造を備えたハニカムフィルタの斜視図である。

図20は、図19のフィルタ59の20-20線に沿った断面図。

図21は、排気ガス浄化装置の要部拡大断面図。

図22は、セラミックフィルタ集合体の斜視図。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の第一実施形態のディーゼルエンジン用の排気ガス浄化装置1を、図1~図5に基づき詳細に説明する。

図1に示されるように、排気ガス浄化装置1は、内燃機関としてのディーゼル

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

エンジン2から排出される排気ガスを浄化するための装置である。ディーゼルエンジン2は、図示しない複数の気筒を備えている。各気筒には、金属材料からなる排気マニホールド3の分岐部4がそれぞれ連結されている。各分岐部4は1本のマニホールド本体5にそれぞれ接続されている。従って、各気筒から排出された排気ガスは一箇所に集中する。

排気マニホールド3の下流側には、金属材料からなる第1排気管6及び第2排気管7が配設されている。第1排気管6の上流端は、マニホールド本体5に連結されている。第1排気管6と第2排気管7との間には、金属材料からなる筒状のケーシング8が配設されている。ケーシング8の上流端は第1排気管6の下流端に連結され、ケーシング8の下流端は第2排気管7の上流端に連結されている。この構成は、排気管6, 7の途上にケーシング8が配設されていると把握するともできる。そして、第1排気管6、ケーシング8及び第2排気管7が連通され、その中を排気ガスが流れる。

図1に示されるように、ケーシング8の中央部は、排気管6, 7よりも大径である。従って、ケーシング8の内部領域は、排気管6, 7の内部領域に比べて広い。ケーシング8内には、セラミックフィルタ集合体9が収容されている。

集合体9の外周面とケーシング8の内周面との間には、断熱材10が配設されている。断熱材10はセラミックファイバを含むマット状物であり、その厚さは数mm～数十mmである。断熱材10は熱膨張性を有していることが好ましい。ここでいう熱膨張性とは、弾性構造を有するため熱応力を解放する機能があることを指す。その理由は、集合体9の最外周部から熱が逃げることを防止することにより、再生時のエネルギーロスを最小限に抑えるためである。また、再生時の熱によってセラミックファイバを膨張させることにより、排気ガスの圧力や走行による振動等のもたらすセラミックフィルタ集合体9の位置ずれを防止するためである。

セラミックフィルタ集合体9は、ディーゼルパティキュレートを除去するものであるため、一般にディーゼルパティキュレートフィルタ（DPF）と呼ばれる

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

。図2、図4に示されるように、集合体9は、複数個のフィルタF1を束ねて一体化することによって形成されている。集合体9の中心部分には四角柱状のフィルタF1が配置され、その外形寸法は33mm×33mm×167mmである（図3参照）。四角柱状のフィルタF1の周囲には、四角柱状でない複数の異型のフィルタF1が配置されている。その結果、全体としてみると円柱状のセラミックフィルタ集合体9（直径135mm前後）が構成されている。

これらのフィルタF1は、セラミック焼結体の一種である多孔質炭化珪素焼結体製である。炭化珪素焼結体を採用した理由は、他のセラミックに比較して、とりわけ耐熱性及び熱伝導性に優れるという利点があるからである。炭化珪素以外の焼結体として、例えば窒化珪素、サイアロン、アルミナ、コーディエライト、ムライト等の焼結体を選択することもできる。

図3等に示されるように、これらのフィルタF1は、いわゆるハニカム構造体である。ハニカム構造体を採用した理由は、微粒子の捕集量が増加したときでも圧力損失が小さいという利点があるからである。各フィルタF1には、断面略正方形形状をなす複数の貫通孔12がその軸線方向に沿って規則的に形成されている。各貫通孔12は薄いセル壁13によって互いに仕切られている。セル壁13の外表面には、白金族元素（例えばPt等）やその他の金属元素及びその酸化物等からなる酸化触媒が担持されている。各貫通孔12の開口部は、いずれか一方の端面9a、9bの側において、封止体14（ここでは多孔質炭化珪素焼結体）により封止されている。従って、端面9a、9bの全体は市松模様を呈している。その結果、フィルタF1には、断面四角形状を有する多数のセルが形成されている。セルの密度は200個／インチ前後に設定され、セル壁13の厚さは0.3mm前後に設定され、セルピッチは1.8mm前後に設定されている。多数あるセルのうち、約半数のものは上流端面9aにおいて開口し、残りのものは下流端面9bにおいて開口している。

フィルタF1の平均気孔径は1μm～50μm、さらには5μm～20μmであることが好ましい。平均気孔径が1μm未満であると、微粒子の堆積によるフ

THIS PAGE BLANK (USPTO)

イルタF1の目詰まりが著しくなる。一方、平均気孔径が $50\text{ }\mu\text{m}$ を越えると、細かい微粒子を捕集することができなくなるため、捕集効率が低下してしまう。

フィルタF1の気孔率は30%~70%、さらには40%~60%であることが好ましい。気孔率が30%未満であると、フィルタF1が緻密になりすぎてしまい、内部に排気ガスを流通させることができなくなるおそれがある。一方、気孔率が70%を越えると、フィルタF1中に空隙が多くなりすぎてしまうため、強度的に弱くなりかつ微粒子の捕集効率が低下してしまうおそれがある。

多孔質炭化珪素焼結体を選択した場合においてフィルタF1の熱伝導率は、2

$0\text{W/mK}$ ~ $80\text{W/mK}$ であることがよく、さらには $30\text{W/mK}$ ~ $70\text{W/mK}$ であることが特によい。

図4、図5に示されるように、合計16個のフィルタF1は、外周面同士がセラミック質シール材層15を介して互いに接着されている。

ここで、セラミック質シール材層15について詳細に述べる。

シール材層15の熱伝導率は $0.1\text{W/mK}$ ~ $10\text{W/mK}$ であることが必要であり、さらには $0.2\text{W/mK}$ ~ $2\text{W/mK}$ であることが好ましい。熱伝導率が $0.1\text{W/mK}$ 未満であると、シール材層15の熱伝導性を十分に改善することができないため、シール材層15が依然として大きな熱抵抗となり、フィルタF1間の熱伝導が阻害されてしまう。逆に、 $10\text{W/mK}$ を超える熱伝導率のものを得ようとすると、接着性や耐熱性等といった性能が損なわれるおそれがあり、事実上製造が困難になるおそれがある。

また、シール材層15の厚さ $t_1$ は $0.3\text{mm}$ ~ $3\text{mm}$ であることが必要であり、さらには $0.5\text{mm}$ ~ $2\text{mm}$ であることが好ましい。

厚さ $t_1$ が $3\text{mm}$ を超えるようになると、たとえ熱伝導率が高くてもシール材層15が依然として大きな熱抵抗となり、フィルタF1間の熱伝導が阻害されてしまう。しかも、集合体9においてフィルタF1部分の占める割合が相対的に減るため、濾過能力の低下につながってしまう。逆に、シール材層15の厚さ $t_1$ が $0.3\text{mm}$ 未満であると、大きな熱抵抗にはならない反面、フィルタF1同士が

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

を接着する力が不足してしまい、集合体9が破壊しやすくなる。シール材層15は、少なくとも無機纖維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する無機纖維と無機粒子とを、無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弹性質素材からなることが望ましい。

シール材層15に含まれる無機纖維としては、シリカーアルミナファイバ、ムライトファイバ、アルミナファイバ及びシリカファイバから選ばれる少なくとも1種以上のセラミックファイバが挙げられる。これらのなかでも、特にシリカーアルミナセラミックファイバを選択することが望ましい。シリカーアルミナセラミックファイバは、弹性に優れるとともに熱応力を吸収する作用を示すからである。

この場合、シール材層15におけるシリカーアルミナセラミックファイバの含有量は、固体分で10重量%～70重量%、好ましくは10重量%～40重量%、より好ましくは20重量%～30重量%である。含有量が10重量%未満であると、弹性体としての効果が低下する。一方、含有量が70重量%を超えると、熱伝導率の低下を招くばかりでなく、弾力性も低下する。

シリカーアルミナセラミックファイバにおけるショット含有量は、1重量%～10重量%、好ましくは1重量%～5重量%、より好ましくは1重量%～3重量%である。ショット含有量を1重量%未満にすることは、製造上困難であり、ショット含有量が50重量%を超えると、フィルタF1の外周面が傷付いてしまうという不利益がある。

シリカーアルミナセラミックファイバの纖維長は、1mm～100mm、好ましくは1mm～50mm、より好ましくは1mm～20mmである。纖維長が1mm未満であると、弹性構造体を形成することができないという不利益がある。纖維長が100mmを超えると、纖維が毛玉化して無機微粒子の分散性が悪化するという不利益がある。また、纖維長が100mmを超えると、シール材層15を3mm以下に薄くすることが困難になり、フィルタF1間の熱伝導性の改善が困

THIS PAGE BLANK (USPTO)

難となる。

シール材層 1.5 に含まれる無機バインダとしては、シリカゾル及びアルミナゾルから選ばれる少なくとも 1 種以上のコロイダルゾルが望ましい。そのなかでも特にシリカゾルを選択することが望ましい。その理由は、シリカゾルは入手しやすく、焼成により容易に  $\text{SiO}_2$  となるため、高温領域での接着剤として好適だからである。しかも、シリカゾルは絶縁性に優れているからである。

この場合、シール材層 1.5 におけるシリカゾルの含有量は、固形分で 1 重量%～30 重量%、好ましくは 1 重量%～15 重量%、より好ましくは 5 重量%～9 重量%である。1 重量%未満の含有量は、接着強度の低下を招き、逆に、30 重量%を超える含有量は、熱伝導率の低下を招く。

シール材層 1.5 に含まれる有機バインダとしては親水性有機高分子が好ましく、ポリビニルアルコール、メチルセルロース、エチルセルロース及びカルボメキシセルロースから選ばれる少なくとも 1 種以上の多糖類がより好ましい。これらの中でも、特にカルボキシメチルセルロースを選択することが望ましい。その理由は、カルボキシメチルセルロースは、シール材層 1.5 に好適な流動性を付与するため、常温領域において優れた接着性を示すからである。

この場合、シール材層 1.5 におけるカルボキシメチルセルロースの含有量は、固形分で 0.1 重量%～5.0 重量%、好ましくは 0.2 重量%～1.0 重量%、より好ましくは 0.4 重量%～0.6 重量%である。0.1 重量%未満の含有量は、マイグレーションの十分な抑制を困難にする。なお、「マイグレーション」とは、被シール体間に充填されたシール材層 1.5 が硬化する際に、シール材層 1.5 中のバインダが、溶媒の乾燥除去に伴って移動する現象のことをいう。一方、含有量が 5.0 重量%を超えると、高温によって有機バインダが焼失し、シール材層 1.5 の強度が低下する。

シール材層 1.5 に含まれる無機粒子としては、炭化珪素、窒化珪素及び窒化硼素から選ばれる少なくとも 1 種以上の無機粉末またはウイスカーを用いた弹性質素材であることが好ましい。このような炭化物や窒化物は、熱伝導率が非常に大

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

きく、セラミックファイバ表面やコロイダルゾルの表面及び内部に介在して熱伝導性の向上に寄与するからである。

上記炭化物及び窒化物の無機粒子のなかでも、特に炭化珪素粉末を選択することが望ましい。その理由は、炭化珪素は熱伝導率が極めて高いことに加え、セラミックファイバと馴染みやすいという性質があるからである。しかも、第1実施形態では、被シール体であるフィルタF1が多孔質炭化珪素製であるため、同種の炭化珪素粉末を選択することが好ましい。

この場合、炭化珪素粉末の含有量は、固形分で3重量%～80重量%、好ましくは10重量%～60重量%、より好ましくは20重量%～40重量%である。含有量が3重量%未満であると、シール材層15の熱伝導率が低下して、シール材層15の熱抵抗が依然として大きな値を有する。一方、含有量が80重量%を超えると、高温時における接着強度が低下する。

炭化珪素粉末の粒径は、0.01μm～100μm、好ましくは0.1μm～15μm、より好ましくは0.1μm～10μmである。粒径が100μmを超えると、接着力及び熱伝導性が低下する。一方、粒径が0.01μm未満であると、シール材層15のコストが上昇する。

次に、セラミックフィルタ集合体9の製造手順を説明する。

まず、押出成形工程で使用するセラミック原料スラリー、端面封止工程で使用する封止用ペースト、フィルタ接着工程で使用するシール材層形成用ペーストをあらかじめ作製しておく。

セラミック原料スラリーは、炭化珪素粉末に有機バインダ及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練することにより作製される。封止用ペーストは、炭化珪素粉末に有機バインダ、潤滑剤、可塑剤及び水を配合し、かつ混練することにより作製される。シール材層形成用ペーストは、無機纖維、無機バインダ、有機バインダ、無機粒子及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練することにより作製される。

次に、セラミック原料スラリーを押出成形機に投入し、かつ金型を介してそれ

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

を連続的に押し出す。その後、押出成形されたハニカム成形体を等しい長さに切断し、四角柱状のハニカム成形体切断片を得る。さらに、切断片の各セルの片側開口部に所定量ずつ封止用ペーストを充填し、各切断片の両端面を封止する。

続いて、温度・時間等を所定の条件に設定して本焼成を行い、ハニカム成形体切断片及び封止体14を完全に焼結させる。このようにして得られる多孔質炭化珪素焼結体製のフィルタF1は、この時点ではまだ全てのものが四角柱状である。

なお、 $6 \mu\text{m} \sim 15 \mu\text{m}$ の平均気孔径と、35%～50%の気孔率を得るために、本実施形態では焼成温度を $2100^{\circ}\text{C} \sim 2300^{\circ}\text{C}$ に設定している。また、焼成時間を0.1時間～5時間に設定している。また、焼成時の炉内雰囲気を不活性雰囲気とし、そのときの雰囲気の圧力を常圧としている。

次に、必要に応じてフィルタF1の外周面にセラミック質からなる下地層を形成した後、さらにその上にシール材層形成用ペーストを塗布する。そして、このようなフィルタF1を16個用い、その外周面同士を互いに接着して一体化する。

続く外形カット工程では、フィルタ接着工程を経て得られた断面正方形状の集合体9を研削し、外周部における不要部分を除去してその外形を整え、断面円形状のセラミックフィルタ集合体9を形成する。

次に、セラミックフィルタ集合体9による微粒子トラップ作用について簡単に説明する。

ケーシング8内に収容されたセラミックフィルタ集合体9には、上流端面9aの側に排気ガスが供給される。第1排気管6を経て供給されてくる排気ガスは、まず、上流端面9aにおいて開口するセル内に流入する。次いで、この排気ガスはセル壁13を通過し、それに隣接しているセル、即ち下流端面9bにおいて開口するセルの内部に到る。そして、排気ガスは、同セルの開口を介してフィルタF1の下流端面9bから流出する。しかし、排気ガス中に含まれる微粒子はセル壁13を通過することができず、そこにトラップされてしまう。その結果、浄化

**THIS PAGE BLANK {USPTO}**

された排気ガスがフィルタ F 1 の下流端面 9 b から排出される。浄化された排気ガスは、さらに第 2 排気管 7 を通過した後、最終的には大気中へと放出される。また、トラップされた微粒子は、集合体 9 の内部温度が所定の温度に達すると、触媒の作用により着火して燃焼する。

(実施例 1 - 1)

(1) 平均粒径  $10 \mu\text{m}$  の  $\alpha$  型炭化珪素粉末 51.5 重量% と、平均粒径  $0.5 \mu\text{m}$  の  $\alpha$  型炭化珪素粉末 22 重量% とを湿式混合し、得られた混合物に有機バインダ（メチルセルロース）と水とをそれぞれ 6.5 重量%、20 重量% ずつ加えて混練した。次に、前記混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練したものをお出成形することにより、ハニカム状の生成形体を得た。具体的には、 $\alpha$  型炭化珪素粉末として、平均粒径が約  $10 \mu\text{m}$  のものは屋久島電工株式会社製の商品名：C-1000F を用い、平均粒径が  $0.5 \mu\text{m}$  のものは屋久島電工株式会社製の商品名：GC-15 を用いた。

(2) 次に、この生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、成形体の貫通孔 12 を多孔質炭化珪素焼結体製の封止用ペーストによって封止した。次いで、再び乾燥機を用いて封止用ペーストを乾燥させた。端面封止工程に続いて、この乾燥体を  $400^{\circ}\text{C}$  で脱脂した後、さらにそれを常圧のアルゴン雰囲気下において  $2200^{\circ}\text{C}$  で約 3 時間焼成した。その結果、多孔質でハニカム状の炭化珪素製フィルタ F 1 を得た。

(3) セラミックファイバ（アルミナシリケートセラミックファイバ、ショット含有率 3%、繊維長さ  $0.1\text{mm} \sim 100\text{mm}$ ）23.3 重量%、平均粒径  $0.3 \mu\text{m}$  の炭化珪素粉末 30.2 重量%、無機バインダとしてのシリカゾル（ゾルの  $\text{SiO}_2$  の換算量は 30%）7 重量%、有機バインダとしてのカルボキシメチルセルロース 0.5 重量% 及び水 39 重量% を混合・混練した。この混練物を適当な粘度に調整することにより、シール材層 15 の形成に使用されるペーストを作製した。

(4) 次に、フィルタ F 1 の外周面上に前記シール材層形成用ペーストを均一に

THIS PAGE BLANK (USPTO)

塗布するとともに、フィルタ F 1 の外周面同士を互いに密着させた状態で、50 °C～100°C×1 時間の条件にて乾燥・硬化させる。その結果、フィルタ F 1 同士をシール材層 1.5 を介して接着する。ここではシール材層 1.5 の厚さ  $t_1$  を 0.5 mm に設定した。シール材層 1.5 の熱伝導率は 0.3 W/mK であった。

(5) 次に、外形カットを実施して外形を整えることにより、断面円形状のセラミックフィルタ集合体 9 を完成させた。

次に、上記のようにして得られた集合体 9 に断熱材 10 を巻き付け、この状態で集合体 9 をケーシング 8 内に収容し、実際に排気ガスを供給した。そして、一定期間経過した後に集合体 9 を取り出してそれを複数箇所で切断し、各切断面を肉眼で観察した。

その結果、燃え残りの起こりやすい集合体 9 の外周部分（とりわけ下流端面付近の外周部分）について、微粒子の残留は認められなかった。勿論、それ以外の部分についても、微粒子は完全に焼失していた。これは、シール材層 1.5 の使用によりフィルタ F 1 間の熱伝導が阻害されにくくなり、集合体 9 の外周部分も十分に温度上昇した結果であると考えられる。従って、実施例 1-1 によれば、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなつた。

#### (実施例 1-2, 1-3)

実施例 1-2 では、シール材層 1.5 の厚さ  $t_1$  を 1.0 mm に設定し、それ以外の事項については基本的に実施例 1-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 9 を作製した。実施例 3 では、シール材層 1.5 の厚さ  $t_1$  を 2.5 mm に設定し、それ以外の事項については基本的に実施例 1-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 9 を作製した。

次に、得られた 2 種の集合体 9 を、実施例 1-1 のときと同様に一定期間使用し、その後で切断面の肉眼観察を行ったところ、実施例 1-1 に匹敵する好適な結果が得られた。よって、実施例 1-2, 1-3 についても排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなつた。

#### (実施例 1-4)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

実施例1-4では、セラミックファイバ（ライトファイバ、ショット含有率5重量%，纖維長さ0.1mm～100mm）25重量%、平均粒径1.0μmの窒化珪素粉末30重量%、無機バインダとしてのアルミナゾル（アルミナゾルの換算量は20%）7重量%、有機バインダとしてのポリビニルアルコール0.5重量%及びアルコール37.5重量%を混合・混練したものを、前記シール材層形成用ペーストとして使用した。それ以外の事項については実施例1-1に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体9を作製した。ここではシール材層15の厚さ $t_1$ を1.0mmに設定した。シール材層15の熱伝導率は0.2W/mKであった。

次に、得られた集合体9を、実施例1-1のときと同様に一定期間使用し、その後で切断面の肉眼観察を行ったところ、実施例1に匹敵する好適な結果が得られた。よって、実施例4についても排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

### (实施例 1 - 5)

実施例1-5は、セラミックファイバ（アルミナファイバ、ショット含有率4重量%，纖維長さ0.1mm～100mm）23重量%、平均粒径1μmの窒化硼素粉末3.5重量%、無機バインダとしてのアルミナゾル（アルミナゾルの換算量は20%）8重量%、有機バインダとしてのエチルセルロース0.5重量%及びアセトン35.5重量%を混合・混練したものを、前記シール材層形成用ベーストとして使用した。それ以外の事項については実施例1に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体9を作製した。ここではシール材層15の厚さt1を1.0mmに設定した。シール材層15の熱伝導率は2W/mKであった。

次に、得られた集合体9を、実施例1-1のときと同様に一定期間使用し、その後で切断面の肉眼観察を行ったところ、実施例1-1に匹敵する好適な結果が得られた。よって、実施例5についても排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

従つて、第一実施形態のセラミックフィルタ集合体9は以下の利点を有する。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(1) 各実施例では、いずれも、シール材層15の厚さ $t_1$ を0.3mm~3mという好適範囲内に設定し、かつその熱伝導率を0.1W/mK~10W/mKという好適範囲内に設定している。このため、シール材層15の熱伝導性が改善され、シール材層15によるフィルタF1間の熱伝導の阻害が防止される。従って、熱が集合体9の全体に均一にかつ速やかに伝導し、集合体9内に温度差が生じにくくなる。よって、集合体9の均熱性が向上し、部分的な燃え残りの発生も回避される。そして、このような集合体9を使用した排気ガス浄化装置1は、排気ガスの処理効率に優れたものとなる。

また、厚さ $t_1$ 及び熱伝導率が上記範囲内であるならば、接着性や耐熱性等といった基本性能も維持されるため、シール材層15の製造が困難になることも回避できる。しかも、フィルタF1同士を接着する力も備えているため、集合体9の破壊も回避できる。つまり、比較的製造しやすく耐久性に優れた集合体9を実現することができる。

(2) 各実施例におけるシール材層15は、固体分で10重量%~70重量%のセラミックファイバを含有している。このため、シール材層15に高い熱伝導率及び弾力性を付与することができる。よって、フィルタF1間の熱伝導性が改善され、集合体9の均熱性がよりいっそう向上する。

(3) 各実施例におけるシール材層15は、繊維長が100mm以下のセラミックファイバを含有している。従って、シール材層15の厚さ $t_1$ を困難なく3mm以下に設定することができる。このことはフィルタF1間の熱伝導性の改善、ひいては集合体9の均熱化に寄与する。

(4) 各実施例におけるシール材層15は、固体分で3重量%~80重量%の無機粒子を含有している。従って、シール材層15に高い熱伝導率が付与される。このこともフィルタF1間の熱伝導性の改善、ひいては集合体9の均熱化に寄与する。

(5) 各実施例におけるシール材層15は、少なくとも無機纖維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機纖維と

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

無機粒子とを、無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弾性質素材からなる。

このような材料には下記のような利点がある。即ち、低温域及び高温域の両方において十分な接着強度を期待することができる。また、この材料は弾性質素材であることから、集合体 9 に熱応力が加わるときでも、その熱応力を確実に開放することができる。

なお、本発明の第一実施形態は以下のように変更してもよい。

(イ) フィルタ F 1 は 16 個に限らず、任意の数であってもよい。この場合

、サイズ・形状等の異なるフィルタ F 1 を適宜組み合わせて使用してもよい。

(ロ) 図 6 に示されるように、別例のセラミックフィルタ集合体 21 では、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って各フィルタ F 1 が互いにずれて配置され、各フィルタ F 1 がシール材層 15 により接着されている。この場合には、ケーシング 8 への収容時にフィルタ F 1 にずれが生じにくくなるため、集合体 21 の破壊強度が向上する。図 6 のセラミックフィルタ集合体 21 では、シール材層 15 が十分字状部分含まず、これが破壊強度の向上に寄与しているものと考えられる。また、集合体 21 の径方向に沿った熱伝導性がさらに向上する結果、集合体 21 のよりいっそうの均熱化が図られる。

(ハ) ハニカム状構造のフィルタ F 1 の代わりに、例えば三次元網目構造、フォーム状構造、ヌードル状構造、ファイバ状構造等のフィルタが用いられてもよい。

(二) 外形カット工程前におけるフィルタ F 1 の形状は、四角柱状に限定されず、三角柱状や六角柱状等であってもよい。また、外形カット工程によって集合体 9 の全体形状は、断面円形状のみならず、例えば断面橿円形状に加工されてもよい。

図 7 は本発明の第二実施形態のセラミックフィルタ集合体におけるハニカムフィルタ F 10 の斜視図であり、図 8 は排気ガス浄化装置の要部拡大断面図である。ハニカムフィルタ F 10 の外周面における角部は面取りにより形成されたアーチ

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

ル面18を有する。アール面18の曲率は $R = 0.3 \sim 2.5$ であることが必要であり、さらには $R = 0.7 \sim 2.5$ であることが好ましく、特には $R = 1.0 \sim 2.0$ であることがより好ましい。

曲率Rが0.3以下であると、角部が依然として角張っていることから、角部への応力集中を十分に回避することができず、欠けやクラックの発生につながりやすくなる。逆に、Rが2.5を超えると、ハニカムフィルタF1の断面積が減少する結果、有効セル数が減ってしまい、集合体29の濾過能力の低下を招く。

第二実施形態のセラミックフィルタ集合体の製造手順は、第一実施形態の製造手順に、四角柱状のハニカム成形体切断片の各角部に対して面取り加工を施し、所定曲率Rを有するアール面18を形成する工程が加えられる。

#### (実施例2-1)

実施例2-1では、生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、各角部を削ることで面取りを施し、各角部に $R = 1.5$ のアール面18を形成し、それ以外の事項については実施例1-1に順ずるようにしてセラミックフィルタ集合体29を作製した。

上記のようにして得られた集合体29を用いて実際に排気ガスを供給し、一定期間経過した後に集合体29を取り出して肉眼観察を行った。

その結果、各角部を起点としたシール材層15のクラックは全く認められなかつた。また、角部の欠けも全く認められなかつた。従って、実施例2-1の集合体29は、極めて強度に優れていることが明らかとなつた。

#### (実施例2-2, 2-3)

実施例2では、アール面18の曲率を $R = 0.4$ に設定し、それ以外の事項については基本的に実施例2-1に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体9を作製した。実施例2-3では、アール面18の曲率を $R = 2.4$ に設定し、それ以外の事項については基本的に実施例2-1に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体29を作製した。

次に、得られた2種の集合体29を、実施例2-1のときと同様に一定期間使

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

用し、その後で肉眼観察を行ったところ、実施例2-1に匹敵する好適な結果が得られた。つまり、実施例2-2, 2-3の集合体29も、極めて強度に優れていることが明らかとなった。

#### (実施例2-4)

実施例2-4では、実施例1-4に順じてシール材層形成用ペーストを作製し、それ以外の事項については実施例2-1に順じてセラミックフィルタ集合体29を作製した。ここではシール材層15の厚さを1.0mmに設定し、各角部のアール面18の曲率をR=1.5に設定した。

次に、得られた集合体29を、実施例2-1のときと同様に一定期間使用し、その後で肉眼観察を行ったところ、実施例2-1に匹敵する好適な結果が得られた。つまり、実施例2-4の集合体9も、極めて強度に優れていることが明らかとなった。

#### (実施例2-5)

実施例2-5は、実施例1-5に順じてシール材層形成用ペーストを作製し、それ以外の事項については実施例2-1に順じてセラミックフィルタ集合体9を作製した。ここではシール材層15の厚さを1.0mmに設定し、各角部のアール面18の曲率をR=1.5に設定した。

次に、得られた集合体29を、実施例2-1のときと同様に一定期間使用し、その後で肉眼観察を行ったところ、実施例2-1に匹敵する好適な結果が得られた。

#### (比較例)

比較例では、各角部に対する面取り加工を施さないようにし、それ以外の事項については基本的に実施例2-1に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体9を作製した。従って、集合体29を構成する各ハニカムフィルタF1は、角張ったものであった。

次に、得られた集合体29を、実施例2-1のときと同様に一定期間使用し、その後で肉眼観察を行ったところ、応力の集中によって複数箇所にクラックや欠

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

けが生じていた。従って、強度に劣るものとなっていた。

従って、第二実施形態のセラミックフィルタ集合体は以下の利点を有する。

(1) ハニカムフィルタ F 1 の外周面における角部が好適曲率範囲のアール面 18 を有していることから、当該角部への応力集中を回避することができる。従って、ハニカムフィルタ F 1 の角部の欠けや、角部を起点としたシール材層 15 のクラックが防止され、セラミックフィルタ集合体 29 が破壊しにくくなる。よって、集合体 29 の強度が向上し、これを用いた排気ガス浄化装置 1 の強度及び濾過能力が向上する。

(2) 多孔質体炭化珪素焼結体からなるハニカムフィルタ 1 を用いることにより、濾過能力が向上され、かつ圧力損失が小さく、しかも耐熱性及び熱伝導性に優れた集合体 29 が得られる。

なお、第二実施形態は以下のように変更してもよい。

図 9 に示されるように、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って各ハニカムフィルタ F 1 が互いにずらした状態で配置されたセラミックフィルタ集合体 22 1 に本発明が具体化されてもよい。

アール面 18 を角部に対する面取り加工により形成する代わりに、金型成形によりハニカム成形体を成形する際にアール面を同時に形成してもよい。

外形カット工程前におけるハニカムフィルタ F 1 の形状は、断面正方形状の四角柱に限定されることはない。例えば、図 10 に示されるように、断面長方形状の四角柱に形成されたハニカムフィルタ F 20 であってもよい。さらには、図 1 に示されるように、三角柱状のハニカムフィルタ F 30 や、図 12 に示されるように六角柱状のハニカムフィルタ F 40 であってもよい。

図 13 は、本発明の第三実施形態のセラミックフィルタ集合体 39 の概略的な断面図である。

図 13、図 14 (b) に示されるように、第三実施形態のセラミックフィルタ集合体 39 の外周面 39c には、セラミック質からなる凹凸解消層 16 が形成されている。凹凸解消層 16 は、少なくともセラミック繊維及びバインダを含むセ

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

ラミック材料を用いて形成される。セラミック材料中には、炭化珪素、窒化珪素、窒化硼素等のような無機粒子が含まれていることが好ましい。バインダとしては、シリカゾルやアルミナゾル等のような無機バインダや、多糖類等に代表される有機バインダを用いることが好ましい。セラミック材料は、三次元的に交錯する有機バインダを用いることが好ましい。セラミック材料は、シール材層15と同種の材料を用いてすることが望ましい。なお、凹凸解消層16はシール材層15と同種の材料を用いて形成されることが望ましく、特に全く同じ材料を用いて形成されることが極めて望ましい。

凹凸解消層16は、0.1mm~10mmの厚さを有していることが好ましく、さらには0.3mm~2mmであることが更に好ましく、特に0.5mm~1mmであることが最適である。凹凸解消層16が薄すぎると、セラミックフィルタ集合体9の外周面9cにある凹凸17を完全に埋めることができず、依然と集合体9全体が大径化したりするおそれがある。

なお、シール材層15は凹凸解消層16よりも薄く、具体的には0.3mm~3mmの範囲内形成されることが好ましい。シール材層15が凹凸解消層16よりも薄いことにより、濾過能力及び熱伝導性の低下が未然に防止される。

次に、セラミックフィルタ集合体39の製造手順を図14に従って説明する。まず、押出成形工程で使用するセラミック原料スラリー、端面封止工程で使用する封止用ペースト、フィルタ接着工程で使用するシール材層形成用ペースト、凹凸解消層形成工程で使用する凹凸解消層形成用ペーストをあらかじめ作製しておく。シール材層形成用ペーストを凹凸解消層の形成にも使用する場合には、凹凸解消層形成用ペーストは作製する必要はない。

炭化珪素粉末に有機バインダ及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練することによりセラミック原料スラリーを作製する。炭化珪素粉末に有機バインダ、潤滑剤、可塑剤及び水を配合し、かつ混練することにより封止用ペーストを作製する。無機繊維、無機バインダ、有機バインダ、無機粒子及び水を所定分量ずつ配合。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

し、かつ混練することによりシール材層形成用ペースト（凹凸解消層形成用ペースト）を作製する。

次に、セラミック原料スラリーを押出成形機に投入し、かつ金型を介してそれを連続的に押し出す。その後、押出成形されたハニカム成形体を等しい長さに切断し、四角柱状のハニカム成形体切断片を得る。さらに、切断片の各セルの片側開口部に所定量ずつ封止用ペーストを充填し、各切断片の両端面を封止する。

続いて、温度・時間等を所定の条件に設定して本焼成を行い、ハニカム成形体切断片及び封止体14を完全に焼結させる。このようにして得られる多孔質炭化珪素焼結体製のフィルタF1は、この時点ではまだ全てのものが四角柱状である

なお、平均気孔径を $6\text{ }\mu\text{m}\sim 15\text{ }\mu\text{m}$ としつつ気孔率を $35\%\sim 50\%$ とするために、本実施形態では焼成温度を $2100^{\circ}\text{C}\sim 2300^{\circ}\text{C}$ に設定している。また、焼成時間を $0.1\text{ 時間}\sim 5\text{ 時間に}$ 設定している。また、焼成時の炉内雰囲気を不活性雰囲気とし、そのときの雰囲気の圧力を常圧としている。

次に、必要に応じてフィルタ F 1 の外周面にセラミック質からなる下地層を形成した後、さらにその上にシール材層形成用ペーストを塗布する。そして、このようないくつかのフィルタ F 1 を 16 個用い、その外周面同士を互いに接着して一体化する。この時点では、図 14 (a) に示されるように、セラミックフィルタ集合体 3 は全体として断面正方形状を呈している。

続く外形カット工程では、前記フィルタ接着工程を経て得られた断面正方形状の集合体39Aを研削し、外周部における不要部分を除去してその外形を整える

。その結果、図14(b)に示されるように、断面円形状のセラミックフィルタ集合体39が得られる。なお、外形カットによって新たに露出した面にはセル壁13が部分的に剥き出しになり、結果として外周面39cに凹凸17ができる。凹凸17は、0.5mm~1mm程度のものであって、集合体39の軸線方向(即ちフィルタF1の長手方向)に沿って延びる突条と溝とを含む。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

続く凹凸解消層形成工程では、シール材層形成用ペーストを凹凸解消層形成用ペーストとして用いて集合体39の外周面9cの上に均一に塗布する。その結果、図14(c)に示されるセラミックフィルタ集合体39が完成する。

#### (実施例3-1)

(1)  $\alpha$ 型炭化珪素粉末51.5重量%と $\beta$ 型炭化珪素粉末22重量%とを湿式混合し、得られた混合物に有機バインダ(メチルセルロース)と水とをそれぞれ6.5重量%、20重量%ずつ加えて混練した。次に、混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練したものを作出成形することにより、ハニカム状の生成形体を得た。

(2) 次に、この生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、成形体の貫通孔12を多孔質炭化珪素焼結体製の封止用ペーストによって封止した。次いで、再び乾燥機を用いて封止用ペーストを乾燥させた。端面封止工程に続いて、この乾燥体を400°Cで脱脂した後、さらにそれを常圧のアルゴン雰囲気下において2200°Cで約3時間焼成した。その結果、多孔質でハニカム状の炭化珪素製フィルタF1を得た。

(3) セラミックファイバ(アルミニナシリケートセラミックファイバ、ショット含有率3%、纖維長さ0.1mm~100mm)23.3重量%、平均粒径0.3μmの炭化珪素粉末30.2重量%、無機バインダとしてのシリカゾル(ゾルのSiO<sub>2</sub>の換算量は30%)7重量%、有機バインダとしてのカルボキシメチルセルロース0.5重量%及び水39重量%を混合・混練した。この混練物を適当な粘度に調整することにより、シール材層15及び凹凸解消層16の形成に使用される兼用ペーストを作製した。

(4) 次に、フィルタF1の外周面に兼用ペーストを均一に塗布するとともに、フィルタF1の外周面同士を互いに密着させた状態で、50°C~100°C×1時間の条件にて乾燥・硬化させる。その結果、フィルタF1同士をシール材層15を介して接着する。ここではシール材層15の厚さを1.0mmに設定した。

(5) 次に、外形カットを実施して外形を整えることにより、断面円形状のセ

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

ラミックフィルタ集合体39を作製した後、その露出した外周面39cに兼用ペーストを均一に塗布する。そして、50℃～100℃×1時間の条件で乾燥・硬化して、厚さ0.6mmの凹凸解消層16を形成し、集合体39を完成させた。

そして、上記のようにして得られた集合体39の各所を肉眼で観察したところ、外周面39cの凹凸17は凹凸解消層16によってほぼ完全に埋められており、外周面39cはフラットな状態になっていた。また、凹凸解消層16とフィルタF1との境界部分、凹凸解消層16とシール材層15との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかった。従って、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。

そこで、断熱材10を巻き付けた状態で集合体39をケーシング8内に収容したところ、集合体39の外周面9cには隙間ができなかつた。また、実際に排気ガスを供給してみたところ、外周面39cの隙間を介して下流側に排気ガスが効率よく処理できることが明らかとなつた。

#### (実施例3-2)

実施例3-2では、セラミックファイバ（ムライトファイバ、ショット含有率5重量%，纖維長さ0.1mm～100mm）25重量%、平均粒径1.0μmの窒化珪素粉末30重量%、無機バインダとしてのアルミニナゾル（アルミニナゾルの換算量は20%）7重量%、有機バインダとしてのポリビニルアルコール0.5重量%及びアルコール37.5重量%を混合・混練したものを、前記兼用ペーストとして使用した。それ以外の事項については実施例3-1に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体39を作製した。

そして、実施例1と同様の肉眼観察を行つたところ、外周面39cの凹凸17は凹凸解消層16によってほぼ完全に埋められていた。また、凹凸解消層16とフィルタF1との境界部分、凹凸解消層16とシール材層15との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかつた。従つて、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

また、集合体39の使用時においてその外周面39cには隙間ができます、しかも隙間を介した排気ガスのリークも起こらないことがわかった。従って、実施例3-2も実施例3-1と同様に、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなつた。

(実施例3-3)

実施例3-3は、セラミックファイバ（アルミニナファイバ、ショット含有率4重量%，纖維長さ0.1mm～100mm）23重量%、平均粒径1μmの窒化硼素粉末35重量%、無機バインダとしてのアルミニゾル（アルミニゾルの換算量は20%）8重量%、有機バインダとしてのエチルセルロース0.5重量%及びアセトン35.5重量%を混合・混練したものを、兼用ペーストとして使用した。それ以外の事項については実施例3-1に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体39を作製した。

そして、実施例3-1と同様の肉眼観察を行ったところ、外周面39cの凹凸17は凹凸解消層16によってほぼ完全に埋められていた。また、凹凸解消層16とフィルタF1との境界部分、凹凸解消層16とシール材層15との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかつた。従って、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。

また、集合体39の使用時においてその外周面39cには隙間ができます、しかも隙間を介した排気ガスのリークも起こらないことがわかった。従って、実施例3-3も実施例3-1と同様に、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなつた。

(比較例)

比較例では、外周面39cに凹凸解消層16を設けないこととし、それ以外の事項については基本的に実施例3-1に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体を作製した。

そして、実施例3-1と同様の肉眼観察を行ったところ、外周面39cには凹凸17が残っていた。ゆえに、集合体の使用時においてその外周面39cに

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

は隙間ができ、その隙間を介した排気ガスのリークが起こることが確認された。

従って、各実施例3-1～3-3と比較して、排気ガスの処理効率に劣ることが明らかであった。

従って、第3実施形態のセラミックフィルタ集合体39は以下の利点を有する

(1) 凹凸解消層16によって凹凸17が埋められることにより、集合体39の外周面9cがフラットである。従って、集合体39の収容時にその外周面39cに隙間ができにくく、排気ガスのリークが防止される。その結果、排気ガスの処理効率に優れたセラミックフィルタ集合体39、ひいては排気ガスの処理効率に優れた排気ガス浄化装置1を実現することができる。

また、凹凸解消層16はセラミック質からなるので、同じく多孔質セラミック焼結体からなるフィルタF1との密着性及び耐熱性にも優れている。従って、集合体39が数百℃の高温に晒されたとしても、凹凸解消層16が焼失・変質するようなことがなく、好適な密着強度も維持される。

(2) 凹凸解消層16の厚さが0.1mm～10mmの好適範囲内に設定されているため、集合体39の製造を困難にすることなく、排気ガスのリークを確実に防止することができる。

(3) シール材層15が凹凸解消層16よりも薄いため、濾過能力及び熱伝導性の低下が未然に防止される。

(4) シール材層15と同じ材料を用いて凹凸解消層16を形成しているため、凹凸解消層16とシール材層15との熱膨張係数が等しくなる等の理由により、両者15, 16の境界部分にクラックが生じにくくなる。つまり、当該境界部分に高い接着性、シール性、信頼性が確保される。

また、シール材層形成用ペーストとは別に、凹凸解消層形成用ペーストを用意する必要がないので、集合体39の製造が容易になり、製造コストの増大が回避される。

(5) シール材層15及び凹凸解消層16を形成するための材料として、次のよ

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

うなものが用いられる。即ち、少なくとも無機繊維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機繊維と無機粒子とを、前記無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弾性質素材が用いられる。

このような材料には下記のような利点がある。即ち、低温域及び高温域の両方において十分な接着強度を期待することができる。また、この材料は弾性質素材であることから、集合体39に熱応力が加わるときでも、その熱応力を確実に開放することができる。さらに、この材料は熱伝導性に優れるため、熱が集合体39の全体に均一にかつ速やかに伝導しやすく、効率のよい排気ガス処理を実現することができる。

なお、本発明の第三実施形態は以下のように変更してもよい。

(イ) 図15に示されるように、セラミックフィルタ集合体321では、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って各フィルタF1を互いにずらした状態で配置してもよい。

(ロ) 凹凸解消層16はシール材層15とは異種のセラミック材料を用いて形成されていてもよい。

(ハ) 凹凸解消層16はシール材層15と等しい厚さを有していてもよく、さらにはシール材層15よりも大きな厚さをゆうしてもよい。

(ニ) 凹凸解消層16は、塗布法にみならず、例えば印刷法、焼き付け法、ディップ法、カーテンコート法等を採用して形成してもよい。

図16は、本発明の第四実施形態のセラミックフィルタ集合体49の概略的な斜視図である。セラミックフィルタ集合体49は、複数の四角柱状のハニカムフィルタF100からなる。

ここで、各ハニカムフィルタF100において、被処理流体である排気ガスの流れ方向（フィルタ端面に対して直交する方向）に沿った寸法を、フィルタ長さL (mm) と定義する。また、各ハニカムフィルタF100をその流れ方向に対して垂直に切断したとき（言い換えるとフィルタ端面に対して平行に切断したとして垂直に切断したとき）

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

き) の面積を、フィルタ断面積  $S$  ( $\text{mm}^2$ ) と定義する。

この場合、 $L/S$  値を  $0.06 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.75 \text{ mm/mm}^2$  とすること必要である。なお、 $L/S$  の値は  $0.10 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.60 \text{ mm/mm}^2$  であることが望ましく、 $0.15 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.40 \text{ mm/mm}^2$  であること最も望ましい。

$L/S$  値が  $0.75 \text{ mm/mm}^2$  を超えると、フィルタ長さ方向に沿って温度差が生じ、その結果、ハニカムフィルタ F 100 に大きな熱応力が働き、クラックが発生しやすくなる。逆に、 $L/S$  値が  $0.06 \text{ mm/mm}^2$  未満であると、フィルタ長さ方向に直交する方向に沿って温度差が生じ、この結果、ハニカムフィルタ F 100 に大きな熱応力が働き、やはりクラックが発生しやすくなる。

フィルタ長さ  $L$  は具体的には  $120 \text{ mm} \sim 300 \text{ mm}$  であることが好ましく、特には  $140 \text{ mm} \sim 200 \text{ mm}$  であることがより好ましい。フィルタ断面積  $S$  は具体的には  $400 \text{ mm}^2 \sim 2500 \text{ mm}^2$  であることが好ましく、特には  $600 \text{ mm}^2 \sim 2000 \text{ mm}^2$  であることがより好ましい。 $L$  や  $S$  の値が上記好適範囲外であると、ハニカムフィルタ F 100 内に温度差が生じ、この結果、大きな熱応力が働きやすくなる。

#### (実施例 4-1)

基本的には実施例 1-1 と同様に集合体 4-9 を製造した。ただし、各ハニカムフィルタ F 100 のたて寸法  $W_1$  は  $33 \text{ mm}$ 、よこ寸法  $W_2$  は  $33 \text{ mm}$ 、長さ  $L$  は  $167 \text{ mm}$  とした。従って、フィルタ断面積  $S$  は  $1089 \text{ mm}^2$  となり、 $L/S$  の値は  $(167 / 1089 =) 0.15 \text{ mm/mm}^2$  となった。

次に、集合体 4-9 に断熱材 10 を巻き付け、この状態で集合体 4-9 をケーシング 8 内に収容し、実際に排気ガスを供給した。

そして、図 18 (A)、図 18 (B) に示されるように、ハニカムフィルタ F 100 の各位置  $P_1 \sim P_6$  に熱電対を埋め込み、各位置における温度  $T_1 \sim T_6$  を経時的に測定するとともに、各位置  $P_1 \sim P_6$  における最大温度差  $\Delta T$  ( $^\circ\text{C}$ ) を求めた。図中の白抜き矢印は、排気ガスの流れ方向を示す。なお、上記の温度測定

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

は、図16において符号Xで示すハニカムフィルタF100について実施した。

そして、一定期間経過した後に集合体49を取り出して各ハニカムフィルタF100の肉眼観察を行い、クラックの発生状況を調査した。その結果、実施例4-1では最大温度差 $\Delta T$  (°C) が約5°Cであり、その値は極めて小さいものであった。また、いずれのハニカムフィルタF100についてもクラックの発生は認められなかった。

(実施例4-2～4-6)

実施例4～6においても、基本的には実施例4-1と同様に集合体49を製造することとした。ただし、実施例4-2では、各ハニカムフィルタF100のたて寸法W1を50mmに、よこ寸法W2を50mmに、長さLを150mmにそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積Sは2500mm<sup>2</sup>となり、L/Sの値は(150/2500)=0.06mm/mm<sup>2</sup>となった。

実施例4-3では、たて寸法W1を20mmに、よこ寸法W2を20mmに、長さLを300mmにそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積Sは400mm<sup>2</sup>となり、L/Sの値は(300/400)=0.75mm/mm<sup>2</sup>となった。

実施例4-4では、たて寸法W1を33mmに、よこ寸法W2を33mmに、長さLを230mmにそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積Sは1089mm<sup>2</sup>となり、L/Sの値は(230/1089)=0.21mm/mm<sup>2</sup>となった。

実施例4-5では、たて寸法W1を25mmに、よこ寸法W2を25mmに、長さLを300mmにそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積Sは625mm<sup>2</sup>となり、L/Sの値は(300/625)=0.48mm/mm<sup>2</sup>となった。

実施例4-6では、たて寸法W1を22mmに、よこ寸法W2を22mmに、長さLを300mmにそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積Sは484mm<sup>2</sup>となり、L/Sの値は(300/484)=0.62mm/mm<sup>2</sup>となった。

上記のようにして得られた5種の集合体59について、実施例4-1と同様の試験を行った。その結果、最大温度差 $\Delta T$  (°C) は0°C～10°C程度であり、その値は極めて小さいものであった。また、いずれのハニカムフィルタF100に

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

ついてもクラックの発生は認められなかつた。

(比較例 1)

比較例 1においても、基本的には実施例 4-1 と同様に集合体 4-9 を製造することとした。ただし、各ハニカムフィルタ F 100 のたて寸法 W 1 を 20 mm に、よこ寸法 W 2 を 20 mm に、長さ L を 400 mm にそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積 S は  $400 \text{ mm}^2$  となり、 $L/S$  の値は  $(400 / 400) = 1.0 \text{ mm/mm}^2$  となつた。

上記のようにして得られた集合体 4-9 について、実施例 4-1 と同様の試験を行つた。その結果、最大温度差  $\Delta T$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) は約 30  $^{\circ}\text{C}$  程度であり、各実施例のときよりも確実に大きくなつていた。特に、比較例 1 では長さ L を極めて大きく設定していることから、フィルタ長さ方向に沿つて温度差ができやすい傾向になつた。

また、いくつかのハニカムフィルタ F 100 ではクラックの発生が認められ、ハニカムフィルタ F 100 の破壊に至つていた。

(比較例 2)

比較例 2においても、基本的には実施例 4-1 と同様に集合体 4-9 を製造することとした。ただし、たて寸法 W 1 を 70 mm に、よこ寸法 W 2 を 7.0 mm に、長さ L を 167 mm にそれぞれ設定した。従つて、フィルタ断面積 S は  $4900 \text{ mm}^2$  となり、 $L/S$  の値は  $(167 / 4900) = 0.03 \text{ mm/mm}^2$  となつた。

上記のようにして得られた集合体 4-9 について、実施例 1 と同様の試験を行つた。その結果、最大温度差  $\Delta T$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) は約 20  $^{\circ}\text{C}$  程度であり、各実施例のときよりも確実に大きくなつていた。特に、比較例 2 ではフィルタ断面積 S を極めて大きく設定していることから、フィルタ長さ方向に直交する方向に沿つて温度差ができるやすい傾向があつた。また、いくつかのハニカムフィルタ F 100 ではクラックの発生が認められ、ハニカムフィルタ F 100 の破壊に至つていた。

従つて、第四実施形態のセラミックフィルタ集合体 4-9 は以下の利点を有する

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(1) フィルタ長さLとフィルタ断面積Sとの比L/Sを上記好適範囲内に設定することにより、集合体49の使用時において、個々のハニカムフィルタF100内に大きな温度差が生じることがなく、大きな熱応力の発生が防止される。よって、ハニカムフィルタF100におけるクラックの発生が防止され、ハニカムフィルタF100が破壊しにくくなる。このように個々のハニカムフィルタF100の強度向上が図られる結果、優れた強度を有するセラミックフィルタ集合体49を製造することができる。また、この集合体49を用いることによって、高強度かつ長期間使用可能な排気ガス浄化装置1を実現することができる。

なお、第四実施形態は以下のように変更してもよい。

(イ) ハニカムフィルタF100の形状は、L/Sの値が0.06mm/m<sup>2</sup>～0.75mm/mm<sup>2</sup>の条件が満たされれば、円柱状、三角柱状又は六角柱状に変更されてもよい。

(ロ) ハニカムフィルタF100は、セラミックフィルタ集合体49の構成部材として使用されてもよいほか、それ自身単体のフィルタとして使用されてもよい。

図19は、本発明の第五実施形態の、ハニカム構造を備えたハニカムフィルタ59の斜視図である。図20は、図19のフィルタ59の20-20線に沿った断面図である。図21は排気ガス浄化装置の要部拡大断面図である。

ハニカムフィルタ59のセルの密度は120個/inch<sup>2</sup> (18個/cm<sup>2</sup>)以上、より具体的には120～180個/inch<sup>2</sup>の範囲であることが好ましい。セルの密度が120個未満であると、排気ガスとの接触面積が小さくなるため、ハニカムフィルタ9の浄化性能が低下する。

セル壁13の厚みは0.46mm以下、より具体的には0.20～0.46mmの範囲であることが好ましい。セル壁13の厚みが0.46mmを超えると、セルの開口面積が小さくなり、排気ガスとの接触面積が小さくなるため、ハニカムフィルタ9の浄化性能が低下する。又、セルの開口面積を確保しつつ、セル壁13の厚みを0.46mmよりも大きくすれば、ハニカムフィルタ9全体の大型

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

化につながる。

ハニカムフィルタ9の平均気孔径は $5\text{ }\mu\text{m} \sim 15\text{ }\mu\text{m}$ 、さらには $8\text{ }\mu\text{m} \sim 12\text{ }\mu\text{m}$ であることが好ましい。平均気孔径が $5\text{ }\mu\text{m}$ 未満であると、パティキュレートの堆積によるハニカムフィルタ9の目詰まりが著しくなる。そのため、圧力損失が大きくなるので、車両の運転条件を妨げ、燃費の悪化、運転フィーリングの悪化を招く。一方、平均気孔径が $50\text{ }\mu\text{m}$ を越えると、細かい微粒子を捕集することができなり、捕集効率が低下し、パティキュレートの濾過機能が損なわれる

ハニカムフィルタ9の気孔率は $30\%$ ~ $50\%$ 、さらには $35\%$ ~ $49\%$ であることが好ましい。気孔率が $30\%$ 未満であると、ハニカムフィルタ9が緻密になりすぎてしまい、内部に排気ガスを流通させることができなくなるおそれがある。一方、気孔率が $50\%$ を越えると、ハニカムフィルタ9中に空隙が多くなりすぎて、強度的に弱くなり、かつ微粒子の捕集効率が低下するおそれがある。

ハニカムフィルタ9に形成されている気孔のうち $20\%$ 以上、より具体的にいうと $20\%$ ~ $80\%$ 、特には $20\%$ ~ $50\%$ が貫通気孔であることが好ましい。ここでいう貫通気孔とは、セル壁13に形成され、隣接する通気孔12同士を連通させる空隙部分を意味する。貫通気孔が気孔の $20\%$ 未満であると、圧力損失が大きくなるので、車両の運転条件を妨げ、燃費の悪化、運転フィーリングの悪化を招くからである。一方、貫通気孔が気孔の $80\%$ を超えると、事実上製造が困難になるおそれがあり、安定的な材料供給が難しくなる。

ハニカムフィルタ9は、その総体積が内燃機関における総排気量の $1/4 \sim 2$ 倍、さらには $1/2 \sim 1.5$ 倍であることが好ましい。 $1/4$ 倍未満であると、パティキュレートの堆積量が多くなり、ハニカムフィルタ9の目詰まりが著しくなる。一方、2倍を超えると、ハニカムフィルタ9が大型化する。ハニカムフィルタ9を大型化した場合、燃焼時にフィルタ9の各部分間で温度差が生じ易く、それによってハニカムフィルタ9に働く熱応力が増大し、クラックが発生する確率が高くなる。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

ハニカムフィルタ9は、セラミック焼結体の一種である多孔質炭化珪素焼結体製である。多孔質炭化珪素焼結体に含まれる不純物は、5重量%以下に抑えられている。不純物の量は1重量%以下であることがよく、0.1重量%以下であることが特によい。不純物が5重量%を超えると、炭化珪素結晶粒子の粒界に不純物が偏り、粒界での強度（結晶粒子間の結合強度）が著しく低下し、粒界破断しやすくなる。なお、不純物としては、Al、Fe、O又は遊離Cを含む。封止体14は、ハニカムフィルタ9と同じ多孔質炭化珪素焼結体製である。

#### （実施例5-1）

基本的には実施例4-1と同様にして生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、成形形体の通気孔12を多孔質炭化珪素焼結体製の封止用ペーストによって封止した。次いで、再び乾燥機を用いて封止用ペーストを乾燥させた。端面封止工程に統いて、この乾燥体を400°Cで脱脂した後、さらにそれを常圧のアルゴン雰囲気下において2250°Cで約3時間焼成した。

その結果、気孔径が10μm、気孔率が42%、気孔に対する貫通気孔の存在率が25%、セルの密度が150個/inch<sup>2</sup>、セル壁13の厚みが0.4mmである多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタ59を得た。このハニカムフィルタ59は、直径が100mm、長さが200mm、総体積が2300cm<sup>3</sup>である。総体積とは、ハニカムフィルタ59全体の体積から通気孔12の体積を差し引いた体積をいう。セル壁13の厚みは0.46mm以下、より具体的には0.20~0.46mmの範囲であることが好ましい。

次に、ハニカムフィルタ59に断熱材10を巻き付け、この状態でハニカムフィルタ59をケーシング8内に収容した。そして、排気量が約3000ccのエンジンを用いて、排気ガス浄化装置1に流速7m/secの排気ガスを供給した。そして、このときのハニカムフィルタ59の上流側における排気ガスの圧力値と、下流側における排気ガスの圧力値とを測定した。そして、これらの値の差である圧力損失△P (mmAq) を求めた。又、トラップできなかったパーティキュレートの量を調査するために、ハニカムフィルタ59の後方にてスス量を測定し

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

た。更に、一定期間経過した後にハニカムフィルタ59を取り出してそれの肉眼観察を行い、クラックの発生状況を調査した。この調査結果を、表1に示す。

表1

	セラミックの種類	平均気孔径(μm)	平均気孔率(%)	貫通気孔の存在率(%)	圧力損失△P(mmAq)	フィルター後方のスス量(g/km)	曲げ強度(MPa)	フィルタの総体積(cm <sup>3</sup> )	クラックの有無
実施例1	炭化珪素	10	42	25	80	0.01	6.5	2300	無
実施例2	炭化珪素	6	38	30	100	0.01	6.2	2300	無
実施例3	炭化珪素	14	48	45	60	0.015	6.0	2300	無
比較例1	炭化珪素	3	10	10	300	0.005	7.2	700	無
比較例2	炭化珪素	20	70	15	40	0.04	2.5	7000	有
比較例3	コージュライト	30	20	15	120	0.015	3.1	700	有

表1に示されるように、実施例5-1では圧力損失△Pが約80mmAqであり、その値は極めて小さいものであった。パティキュレートの漏れ量は、0.01g/kmであり、その値は極めて小さいものであった。ハニカムフィルタ9の曲げ強度は6.5MPaであり、極めて高い機械的強度が付与されていた。ハニカムフィルタ9にクラックの発生は認められなかった。

#### (実施例5-2, 5-3)

実施例5-2, 5-3においても、基本的には実施例5-1と同様にハニカムフィルタ59を製造することとした。ただし、実施例5-2, 5-3では、ハニカムフィルタ59の総体積のみを実施例5-1と同じにした。又、形成材料の配合比、焼成温度、焼成時間等を変更することにより、ハニカムフィルタ59の気孔径、気孔率、気孔に対する貫通気孔の存在率を以下のように調整した。

すなわち、実施例5-2では、気孔径が6μm、気孔率が32%、貫通気孔の存在率が30%である多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタ59を得た。そして、実施例5-1と同様の試験を行ったところ、圧力損失△Pが約100m

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

$\text{m A q}$  であり、その値は極めて小さいものであった。パティキュレートの漏れ量は、 $0.01 \text{ g / km}$  であり、その値は極めて小さいものであった。ハニカムフィルタ 59 の曲げ強度は  $6.2 \text{ MPa}$  であり、高い機械的強度が付与されていた。更に、ハニカムフィルタ 59 にクラックの発生は認められなかった。

実施例 5-3 では、気孔径が  $14 \mu\text{m}$ 、気孔率が 48%、貫通気孔の存在率が 45% である多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタ 59 を得た。この実施例の試験結果は、圧力損失  $\Delta P$  が約  $60 \text{ mm A q}$  であり、その値は極めて小さいものであった。パティキュレートの漏れ量は、 $0.015 \text{ g / km}$  であり、その値は極めて小さいものであった。ハニカムフィルタ 59 の曲げ強度は  $6.0 \text{ MPa}$  であり、高い機械的強度が付与されていた。ハニカムフィルタ 59 にクラックの発生は認められなかった。

#### (比較例 1 ~ 3)

比較例 1 ~ 3 においても、基本的には実施例 5-1 と同様にハニカムフィルタを製造することとした。ただし、比較例 1 では、ハニカムフィルタの総体積を排気量 ( $3000 \text{ cc}$ ) の  $1/4$  倍未満である  $700 \text{ cm}^3$  とした。又、ハニカムフィルタの気孔径、気孔率、気孔に対する貫通気孔の存在率を以下のようにした。

比較例 1 では、気孔径が  $3 \mu\text{m}$ 、気孔率が 10%、貫通気孔の存在率が 10% である多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタを得た。比較例 1 の試験結果は、圧力損失  $\Delta P$  が約  $300 \text{ mm A q}$  であり、その値は極めて大きいものであった。パティキュレートの漏れ量は、 $0.005 \text{ g / km}$  であり、その値は極めて小さいものであった。ハニカムフィルタの曲げ強度は  $7.2 \text{ MPa}$  であり、高い機械的強度が付与されていた。ハニカムフィルタにクラックの発生は認められなかった。

比較例 2 では、ハニカムフィルタの総体積を実施例 1 ~ 3 よりも大きい、すなわち排気量 ( $3000 \text{ cc}$ ) の 2 倍以上である  $7000 \text{ cm}^3$  とした。又、気孔径が  $20 \mu\text{m}$ 、気孔率が 70%、貫通気孔の存在率が 15% である多孔質炭化珪

THIS PAGE BLANK (USPTO)

素焼結体製のハニカムフィルタを得た。比較例2の試験結果は、圧力損失 $\Delta P$ が約40mmAqであり、その値は極めて小さいものであった。パティキュレートの漏れ量は、0.04g/kmであり、その値は極めて大きいものであった。ハニカムフィルタの曲げ強度は2.5MPaであり、十分な機械的強度を得ることできなかった。ハニカムフィルタにクラックの発生が認められた。

比較例3では、前記比較例1, 2と異なり、公知である製造方法によってコージェライト製のハニカムフィルタを得た。そして、このハニカムフィルタの総体積は700cm<sup>3</sup>であった。又、ハニカムフィルタは、気孔径が30μm、気孔率が20%、貫通気孔の存在率が15%であった。比較例3の試験結果は、圧力損失 $\Delta P$ が約120mmAqであり、その値は大きいものであった。パティキュレートの漏れ量は、0.015g/kmであり、その値は大きいものであった。ハニカムフィルタの曲げ強度は3.1MPaであり、十分な機械的強度を得ることできなかった。ハニカムフィルタにクラックの発生が認められた。

以上のように、実施例5-1～5-3、比較例1～3について比較検討した結果は上記表1に示されている。

#### (試験結果)

表1から明らかなように、実施例5-1～5-3では、いずれも排気ガスがハニカムフィルタ59をスムーズに通過することが認められた。又、パティキュレートの漏れ量がほとんどないとともに、ハニカムフィルタ59の機械的強度を確保することができた。これに対し、比較例1では、ハニカムフィルタの機械的強度を確保することはできた。しかし、排気ガスがハニカムフィルタをスムーズに通過することは認められなかった。又、比較例2では、排気ガスがハニカムフィルタをスムーズに通過することが認められた。しかし、ハニカムフィルタの機械的強度を確保することはできなかった。更に、比較例3では、排気ガスがハニカムフィルタをスムーズに通過することが認められないとともに、ハニカムフィルタの機械的強度を確保することもできなかった。

従って、第五実施形態のハニカムフィルタ59は以下の利点を有する。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(1) ケーシング8内には、多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタ9が設けられている。ハニカムフィルタ9は、その平均気孔径が5～15μm、平均気孔率が30～40%、気孔に対する貫通気孔の存在率が20%以上に設定され、気孔に対する貫通気孔の存在率が20%以上に設定されている。そのため、ハニカムフィルタ9が緻密になりすぎないので、内部に排氣ガスをスムーズに通過させることができ、圧力損失を小さくすることができる。従って、燃費が向上し、運転フィーリングの悪化が防止される。又、ハニカムフィルタ9の空隙量が多くなりすぎないので、細かいパティキュレートを確実に捕集することができ、捕集効率が向上する。更に、ハニカムフィルタ9が多孔質であったとしても十分な機械的強度を確保することができる。よって、振動や熱衝撃により破壊しにくいハニカムフィルタ9を得ることができる。

(2) ハニカムフィルタ9は、その平均気孔径が8～12μm、平均気孔率が35～49%、気孔に対する貫通気孔の存在率が20～50%以上に設定され、気孔に対する貫通気孔の存在率が20～50%以上に設定されている。そのため、圧力損失をよりいっそう低くすることができるとともに、強度も確実に向上することができる。

(3) ハニカムフィルタ9の両端面には、封止体14により交互に封止されたセルが形成されている。セルの数が単位平方インチあたり120個以上、かつセル壁13の厚みが0.46mm以下に設定されている。そのため、排気ガスとの接触面積が大きくなり、ハニカムフィルタ9の浄化性能が向上する。

(4) ハニカムフィルタ9の総体積がディーゼルエンジン2における総排気量の1/4～2倍に設定されている。そのため、パティキュレートの堆積量が多くなりすぎないので、ハニカムフィルタ9の目詰まりが防止される。又、ハニカムフィルタ9が大型化することができないので、燃焼時にハニカムフィルタ9の各部分間で温度差が生じるのが防止される。よってハニカムフィルタ9に働く熱応力を低減でき、クラックが発生するのを確実に防止することができる。

なお、第五実施形態は以下のように変更してもよい。

(イ) ハニカムフィルタ9の形状は、円柱状に限定されることはなく、三角柱状、四角柱状、六角柱状等に変更されてもよい。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(ロ) 図22に示されるように、複数個（ここでは16個）のハニカムフィルタ523を一体化することにより1つのセラミックフィルタ集合体521を製造してもよい。各角柱状ハニカムフィルタ523は、平均気孔径が8～12μmかつ平均気孔率が35～49%であり、気孔の20～50%が貫通気孔である。ハニカムフィルタ523の外周面は、互いにセラミック質シール材層522を介して接着されている。

次に、本発明の第六実施形態のハニカムフィルタについて図19～図21に従って説明する。

第六実施形態では、ハニカムフィルタ59のセル壁13を構成する粒子の比表面積は0.1m<sup>2</sup>/g以上、より具体的にいうと0.1～1m<sup>2</sup>/gに設定されており。セル壁13の比表面積が0.1m<sup>2</sup>/g以下であると、パティキュレートの堆積によるハニカムフィルタ59の目詰まりが著しくなる。そのため、圧力損失が大きくなるので、車両の燃費の悪化、運転フィーリングの悪化を招く。一方、比表面積が1.0m<sup>2</sup>/gを超えると、細かい微粒子を捕集することができなくなるため、捕集効率が低下し、ハニカムフィルタ59の濾過機能が損なわれる。

#### （実施例6-1）

基本的には実施例5-1と同様にセル壁13を構成する粒子の比表面積が0.3m<sup>2</sup>/gであるハニカムフィルタ59を製造した。又、実施例6-2、比較例5-2及び比較例のハニカムフィルタ59は、それぞれセルの密度が150個/cm<sup>2</sup>、セル壁13の厚みが0.4mmであった。

次に、ハニカムフィルタ59に断熱材10を巻き付け、この状態でハニカムフィルタ59をケーシング8内に収容した。そして、排気量が約3000ccのディーゼルエンジン2を用いて、9m/sの流速にて排気ガス浄化装置1に排気ガ

THIS PAGE BLANK (USPTO)

スを供給した。そして、このときのハニカムフィルタ59の上流側における排気ガスの圧力値と、下流側における排気ガスの圧力値とを測定した。そして、これらの値の差である圧力損失 $\Delta P$  (mm Aq) を求めた。この結果を以下の表2に示す。

表 2

	実施例1	実施例2	比較例
比表面積 (cm <sup>2</sup> /g)	0.3	0.8	0.05
パティキュレートの 圧力損失 (mmAq)	180	120	250

上記の表2から明らかなように、実施例6-1、6-2及び比較例のハニカムフィルタ59において、圧力損失 $\Delta P$ は、それぞれ180 mm Aq、120 mm Aqであり、比較例では250 mm Aqであった。従って、実施例6-1、6-2では比較例のような大きな圧力損失は見られなかった。

従って、第六実施形態のハニカムフィルタ59は以下の利点を有する。

(1) ハニカムフィルタ9のセル壁13を構成する粒子の比表面積が0.1 m<sup>2</sup>/g以上に設定されている。そのため、ハニカムフィルタ9が緻密になりすぎないので、内部に排気ガスをスムーズに通過させることができ、圧力損失を小さくすることができる。従って、燃費が向上し、運転フィーリングの悪化が防止される。しかも、粒子の比表面積の上限が1.0 m<sup>2</sup>/gに設定されている。そのため、ハニカムフィルタ9の空隙量が多くなりすぎず、細かいパティキュレートを確実に捕集することができ、捕集効率が向上する。

(2) 炭化珪素焼結体製のセル壁13は耐熱性に優れているため、セル壁13の変質や焼失が防止される。従って、長期間にわたって効率のよい流体の浄化を行うことができる。

(3) 多孔質体からなるセル壁13は、排気ガスをよりいっそうスムーズに

THIS PAGE BLANK (USPTO)

通過させることができ、さらなる圧力損失の低減に貢献することができる。それとともに、パティキュレートの捕集効率をいっそう高めることができる。

なお、第六実施形態は以下のように変更してもよい。

複数個（ここでは 16 個）のハニカムフィルタを一体化することにより 1 つのセラミックフィルタ集合体を製造してもよい。各ハニカムフィルタのセル壁の比表面積は、0.1 ~ 1 m<sup>2</sup>/g に設定されている。

#### 産業上の利用可能性

本発明のセラミックフィルタ集合体は、ディーゼルエンジン 2 に取り付けられる排気ガス浄化装置用フィルタ、熱交換器用部材、高温流体や高温蒸気のための濾過フィルタ等に利用可能である。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

## 請求の範囲

1. 各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタ (F 1) の外周面をセラミック質シール材層 (15) を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体 (9) であって、

前記シール材層 (15) は、0.3 mm～3 mmの厚さ (t 1) を有し、かつ $0.1 \text{ W/mK} \sim 10 \text{ W/mK}$ の熱伝導率を有していることを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

2. 請求項1に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、固形分で70重量%以下のセラミックファイバを含有する。

3. 請求項1または2に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、100 mm以下の纖維長を有するセラミックファイバを含有する。

4. 請求項1乃至3のいずれか1項に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、固形分で3重量%～80重量%の無機粒子を含有する。

5. 各々がセラミック焼結体からなる複数の角柱状ハニカムフィルタ (F 10) の外周面をセラミック質シール材層 (15) を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体 (29) であって、

各ハニカムフィルタの外周面における角部は、面取りが施されたアール面 (18) を有し、そのアール面は0.3～2.5の曲率Rを有することを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

6. 各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタ (F 1) の外周

THIS PAGE BLANK (USPTO)

面をセラミック質シール材層（15）を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体（39）であって、

全体として断面略円形状または断面略橍円形状を有する集合体の外周面に形成され、セラミック質からなる凹凸解消層（16）を備えることを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

7. 請求項6に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記凹凸解消層は0.1mm～10mmの厚さを有する。

8. 請求項6または7に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は前記凹凸解消層よりも薄い。

9. 請求項6乃至8のいずれか1項に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記凹凸解消層は前記シール材層と同じ材料からなる。

10. 各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数の柱状ハニカムフィルタ（F100）の外周面をセラミック質シール材層（15）を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体（49）であって、被処理流体の流れ方向に沿ったフィルタ長さLと、その流れ方向に対して直交する方向におけるフィルタ断面積Sとの比L/Sが、0.06mm/mm<sup>2</sup>～0.75mm/mm<sup>2</sup>であることを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

11. 請求項1乃至10のいずれか1つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記集合体はディーゼルパティキュレートフィルタである。

12. 請求項1乃至11のいずれか1つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記フィルタは、多孔質炭化珪素焼結体からなる。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

13. 請求項1乃至12のいずれか1つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、少なくとも無機纖維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機纖維と無機粒子とを、前記無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弾性質素材からなる。

14. 請求項1乃至13のいずれか1つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、固形分で10重量%～70重量%のシリカーアルミナセラミックファイバ、1重量%～30重量%のシリカゾル、0.1重量%～5.0重量%のカルボメトキシセルロース及び3重量%～80重量%の炭化珪素粉末からなる。

15. 請求項1乃至14のいずれか1つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記フィルタは、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って互いにずらした状態で配置されている。

16. 各々がセル壁(13)によって区画された複数のセルを有し、前記セル壁によってパティキュレートを含む流体を浄化する複数のハニカムフィルタ(523)の外周面をセラミック質シール材層(522)を介して接着することにより一体化されたハニカムフィルタ集合体(521)であって、  
前記セル壁を構成する粒子の比表面積が0.1m<sup>2</sup>/g以上であることを特徴とするハニカムフィルタ集合体。

17. 多孔質セラミック焼結体からなる柱状ハニカムフィルタ(F100)  
であって、  
被処理流体の流れ方向に沿ったフィルタ長さと、その流れ方向に対して直交

THIS PAGE BLANK (USPTO)

する方向におけるフィルタ断面積Sとの比L/Sが、0.06 mm/mm<sup>2</sup>~0.75 mm/mm<sup>2</sup>であることを特徴とするハニカムフィルタ。

18. 多孔質セラミック焼結体からなるハニカムフィルタ(59)において

ハニカムフィルタの平均気孔径が5~15 μmで、平均気孔率が30~50%であり、ハニカムフィルタは20%以上の貫通気孔を有することを特徴とするハニカムフィルタ。

19. 請求項18に記載のハニカムフィルタにおいて、平均気孔径が8~12 μmかつ平均気孔率が35~49%であり、貫通気孔の比率が20~50%である。

20. 請求項18又は19に記載のハニカムフィルタにおいて、第1の端面が封止体(14)により封止された第1のセルと、第1のセルにセル壁を介して隣接し、第1の端面とは反対側の第2の端面が封止体により封止された第2のセルとを含む複数のセルを備え、セル数が単位平方インチあたり120個以上であるとともに、前記セルを区画するセル壁の厚みが0.46 mm以下である。

21. セル壁(13)によって区画された複数のセルを有し、前記セル壁によってパーティキュレートを含む流体を浄化するハニカムフィルタ(59)において、

前記セル壁を構成する粒子の比表面積が0.1 m<sup>2</sup>/g以上であることを特徴とするハニカムフィルタ。

22. 請求項21に記載のハニカムフィルタにおいて、前記セル壁は、炭化珪素焼結体からなる。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

23. 請求項21又は22に記載のハニカムフィルタにおいて、前記セル壁は、多孔質体からなる。

24. 内燃機関(2)の排気経路に設けられたケーシング(8)内に配置され、排気ガス中に含まれるパティキュレートを除去する多孔質セラミック焼結体製のハニカムフィルタ(59)を備えた排気ガス浄化装置(1)において、前記ハニカムフィルタの平均気孔径が $5 \sim 15 \mu\text{m}$ で、平均気孔率が30~40%であり、ハニカムフィルタは20%以上の貫通気孔を有することを特徴とする排気ガス浄化装置。

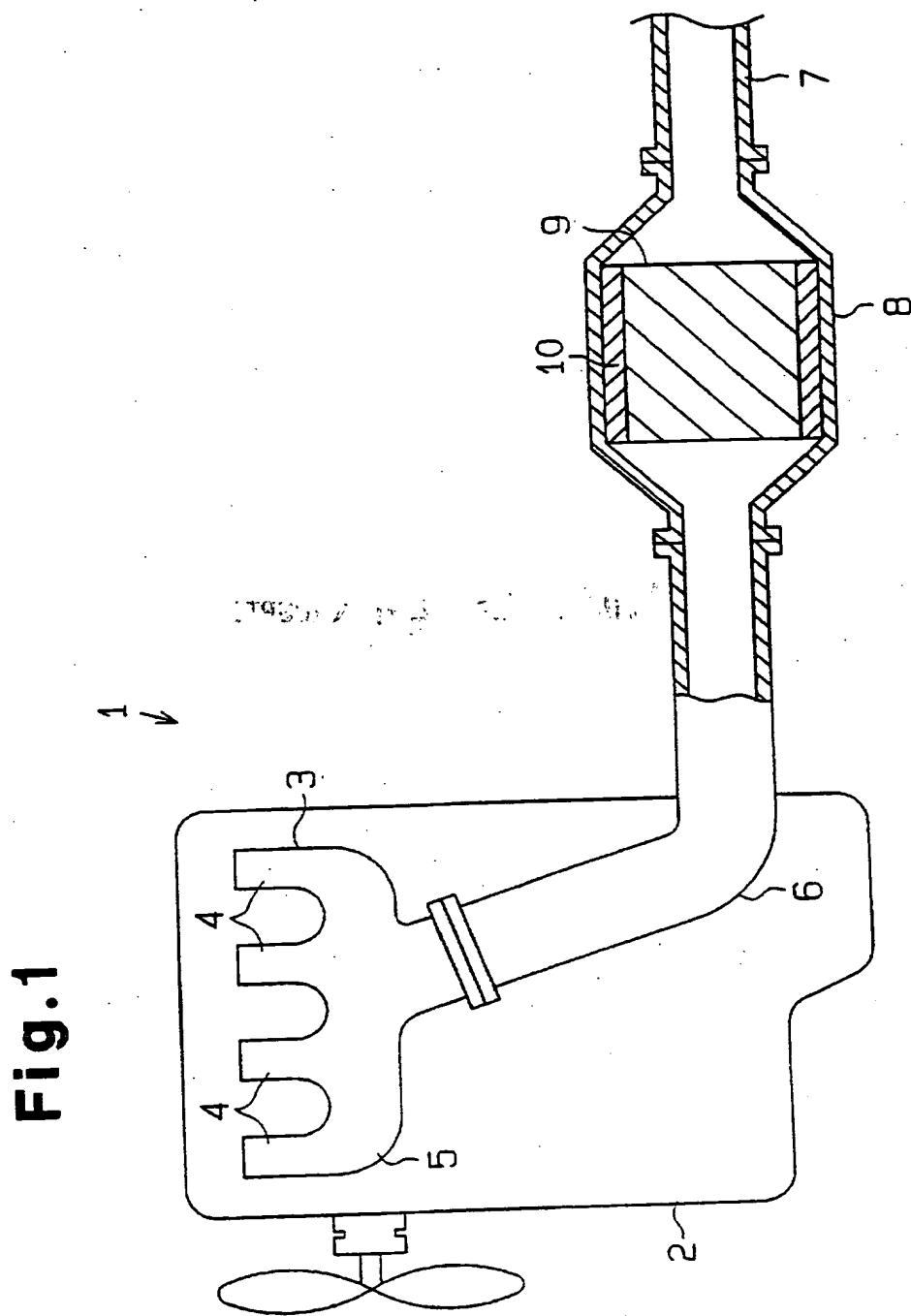
25. 請求項24に記載の排気ガス浄化装置において、前記ハニカムフィルタの平均気孔径が $8 \sim 12 \mu\text{m}$ で、平均気孔率が35~49%であり、ハニカムフィルタは20~50%以上の貫通気孔を有する。

26. 請求項24又は25に記載の排気ガス浄化装置において、第1の端面が封止体(14)により封止された第1のセルと、第1のセルにセル壁を介して隣接し、第1の端面とは反対側の第2の端面が封止体により封止された第2のセルを含む複数のセルを備え、セル数が単位平方インチあたり120個以上であるとともに、前記セルを区画するセル壁の厚みが0.46mm以下である。

27. 請求項24~26のうちいずれか1項に記載の排気ガス浄化装置において、前記ハニカムフィルタの総体積は前記内燃機関における総排気量の1/4~2倍である。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

1/19



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

2/19

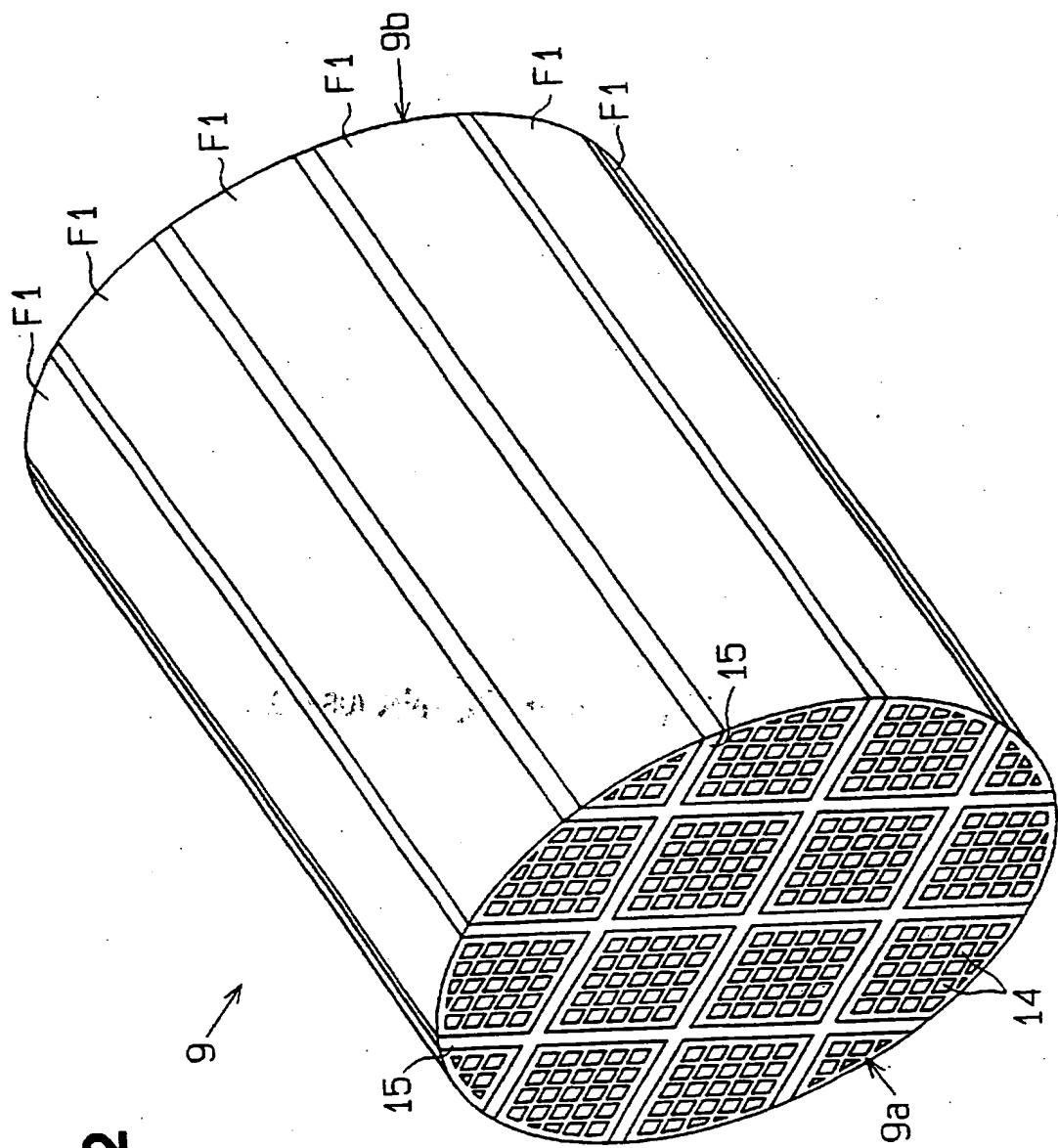
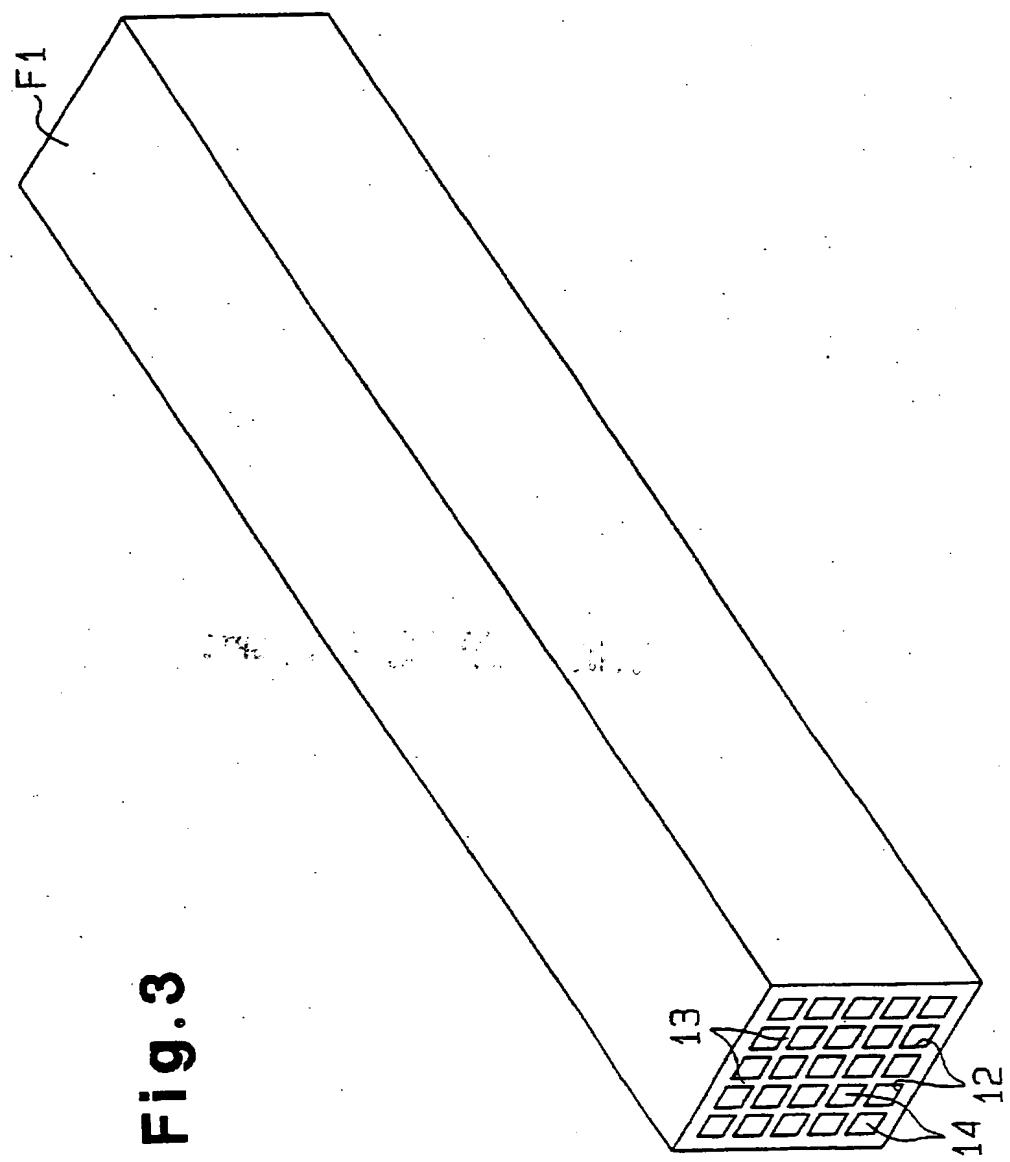


Fig. 2

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

3/19



**Fig. 3**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

4/19

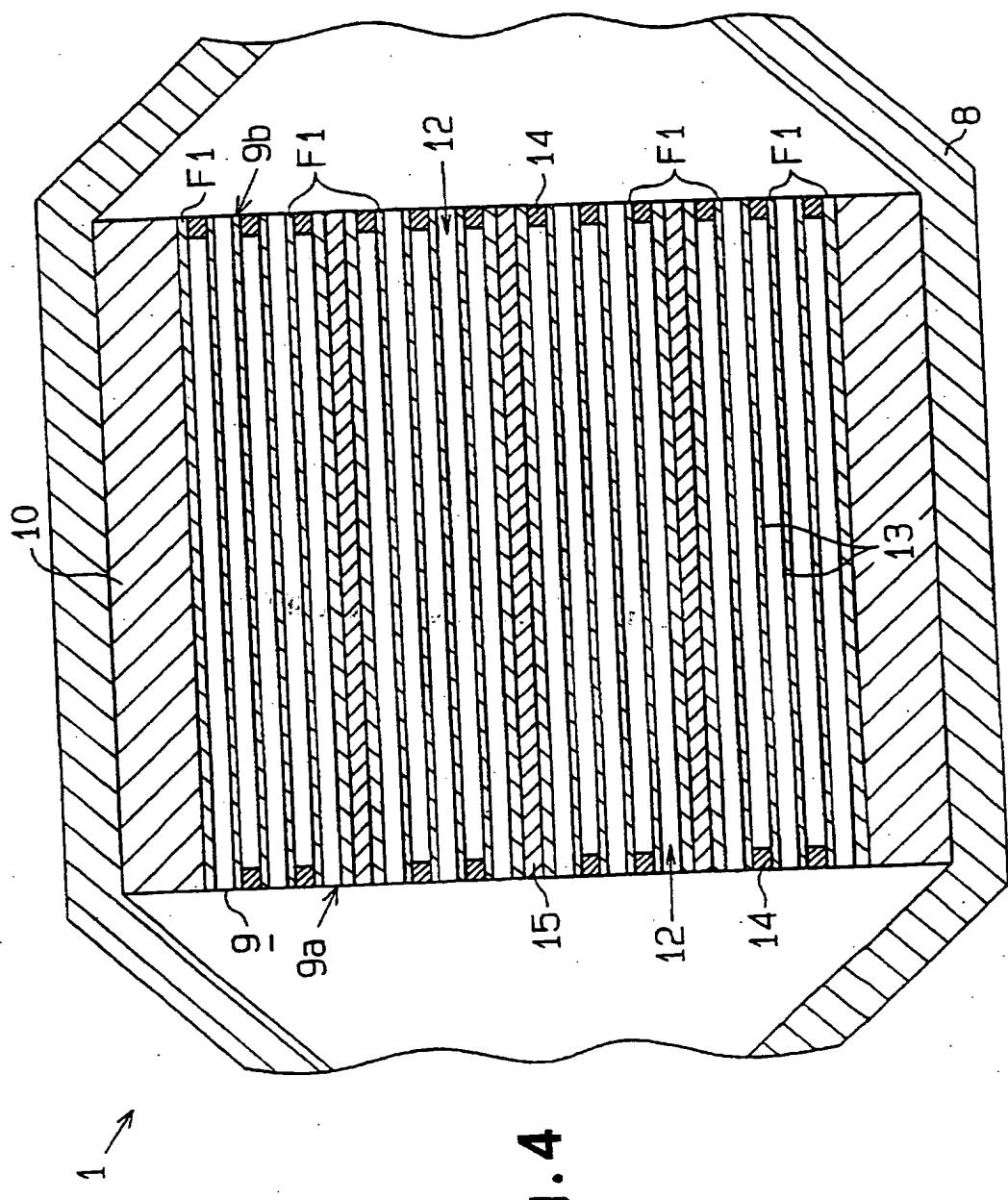
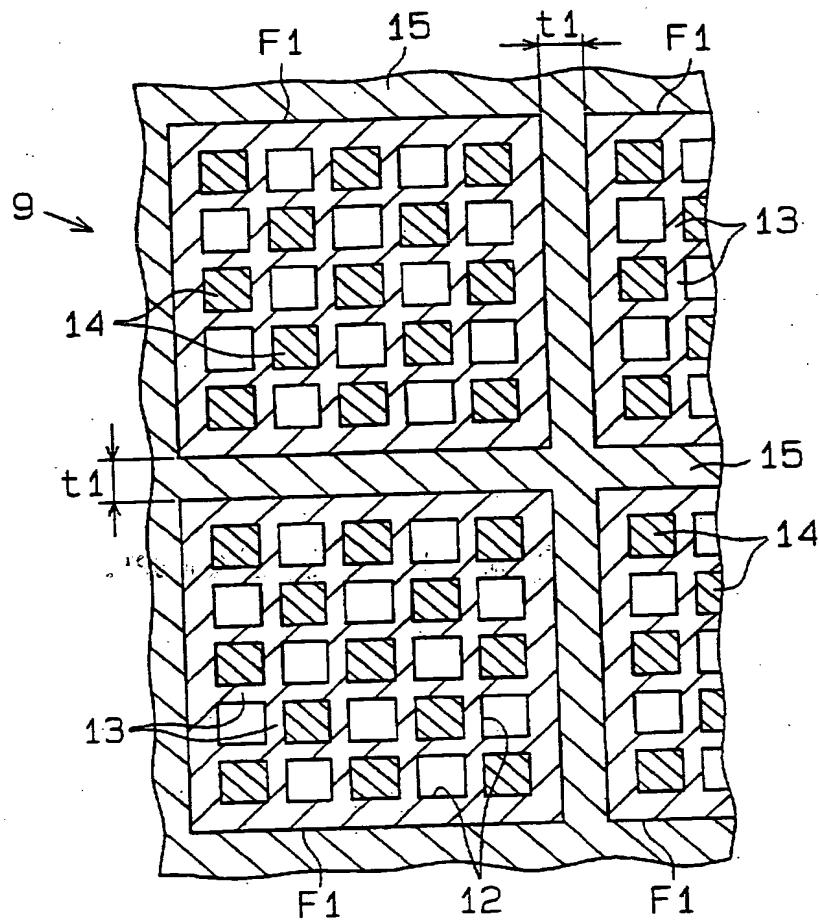


Fig. 4

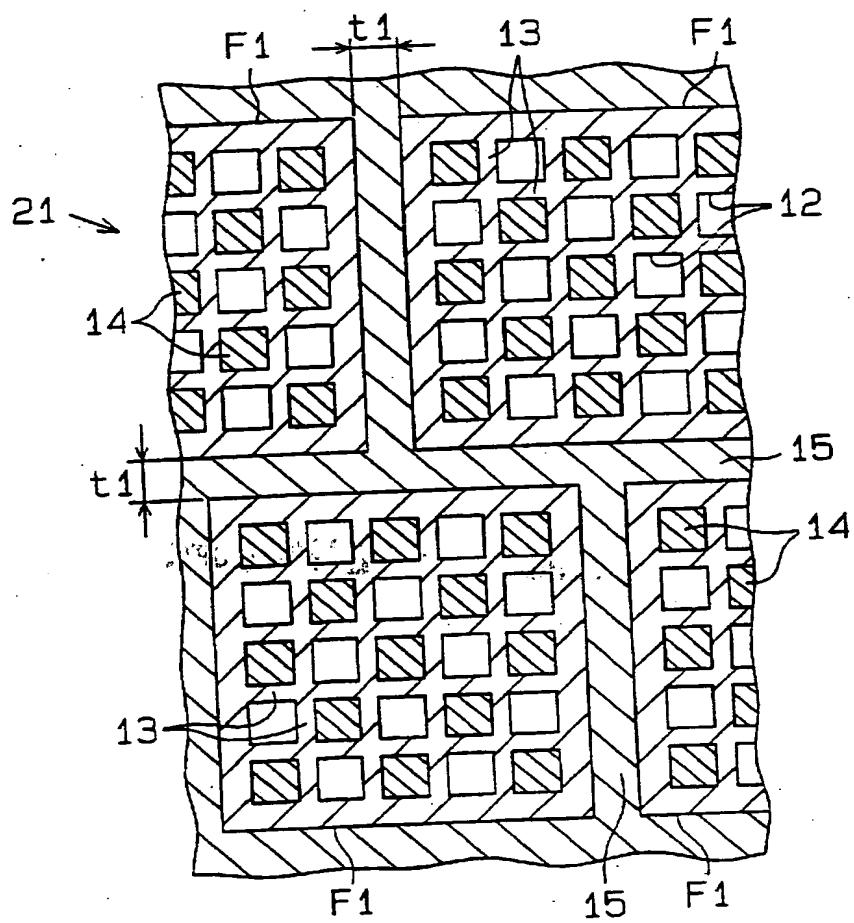
**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

5/19

**Fig.5**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

6/19

**Fig. 6**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

7/19

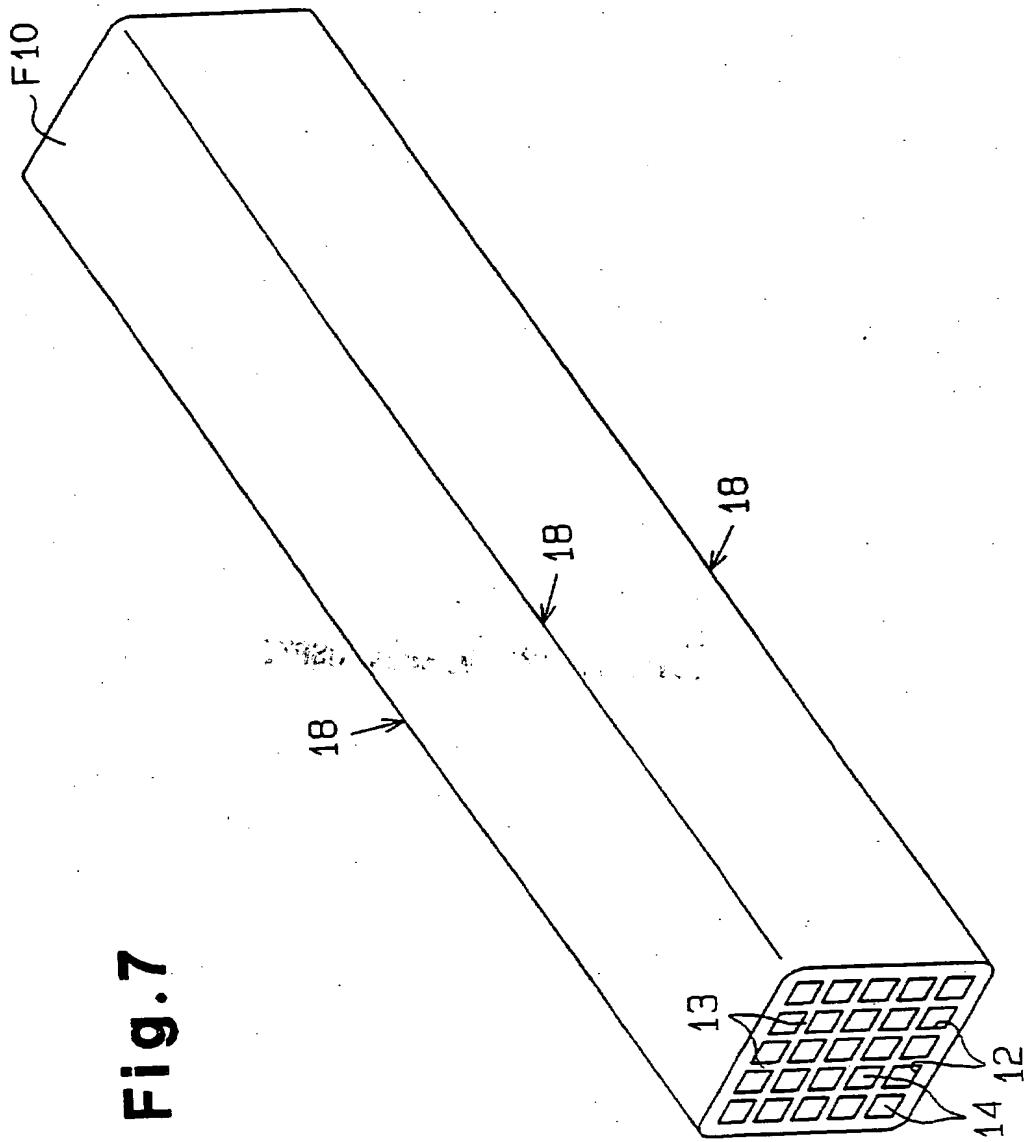
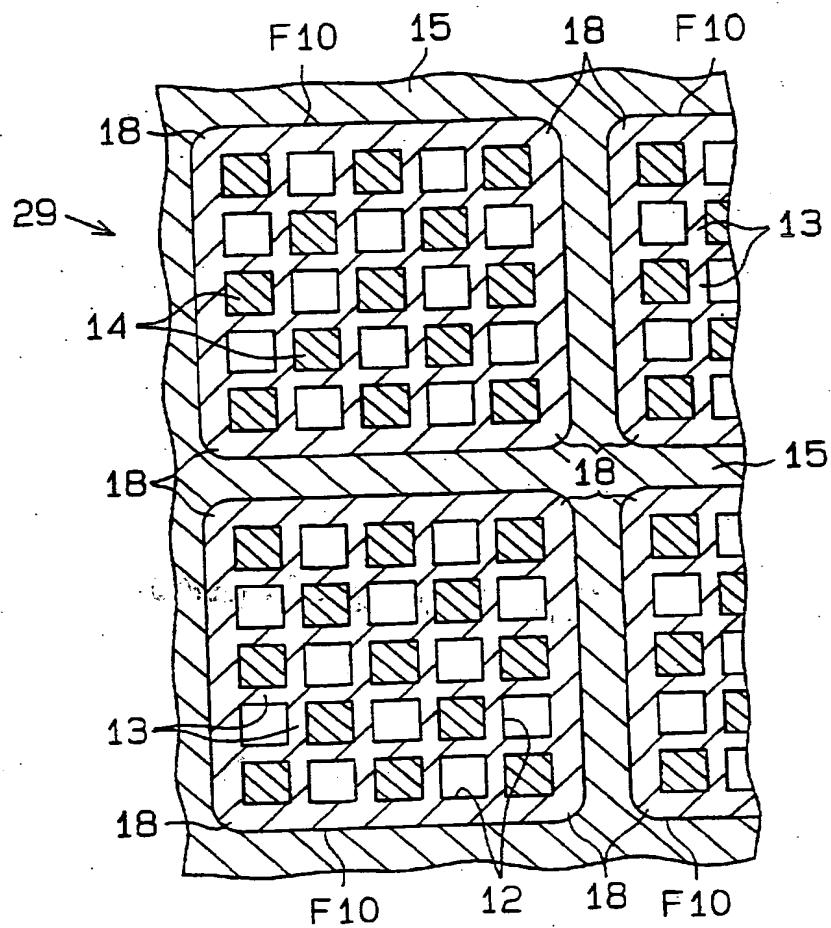


Fig. 7

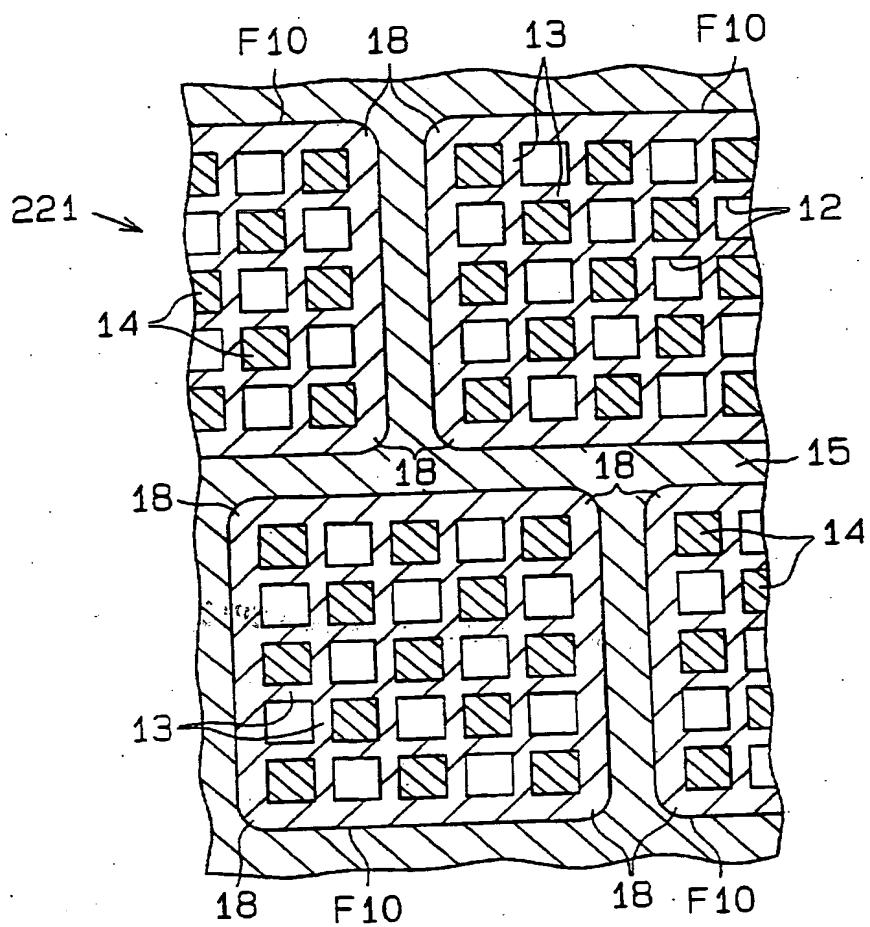
**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

8/19

**Fig.8**

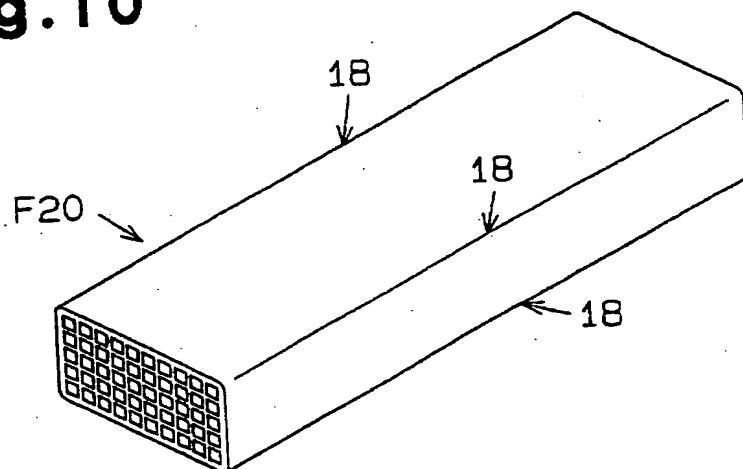
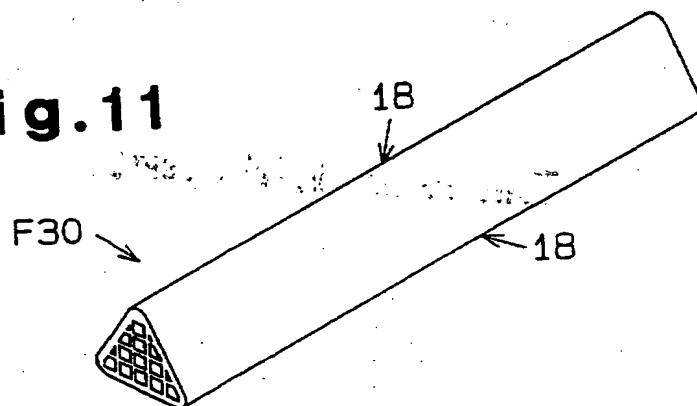
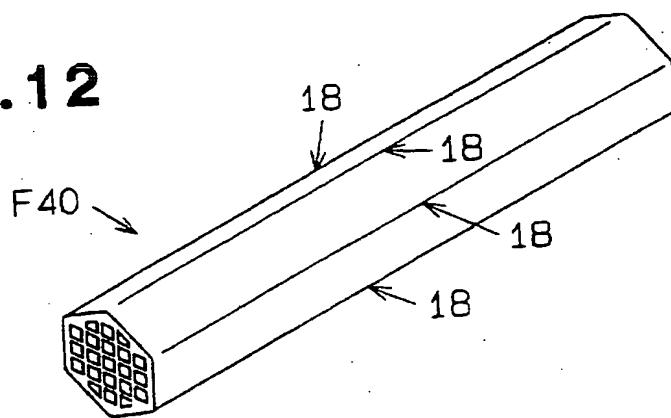
THIS PAGE BLANK (USPTO)

9/19

**Fig. 9**

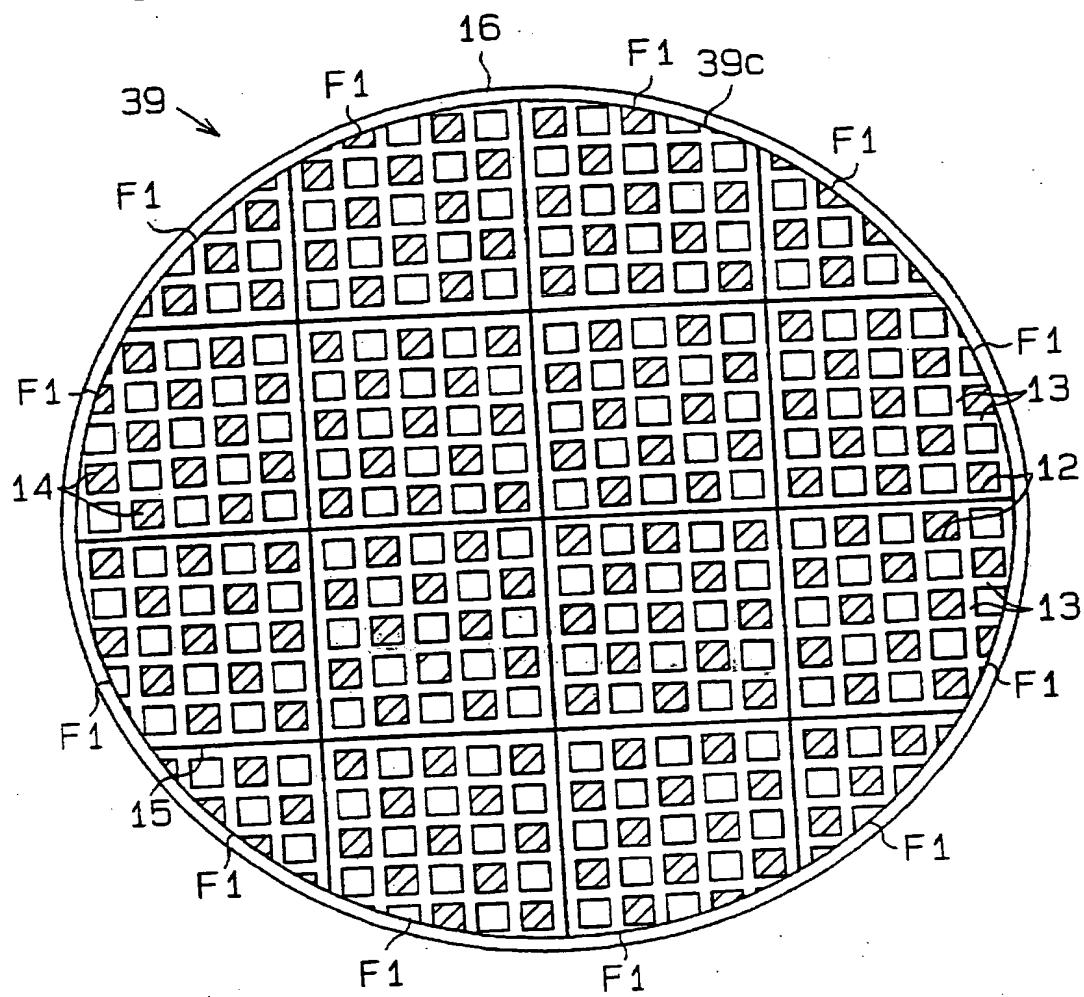
**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

10/19

**Fig.10****Fig.11****Fig.12**

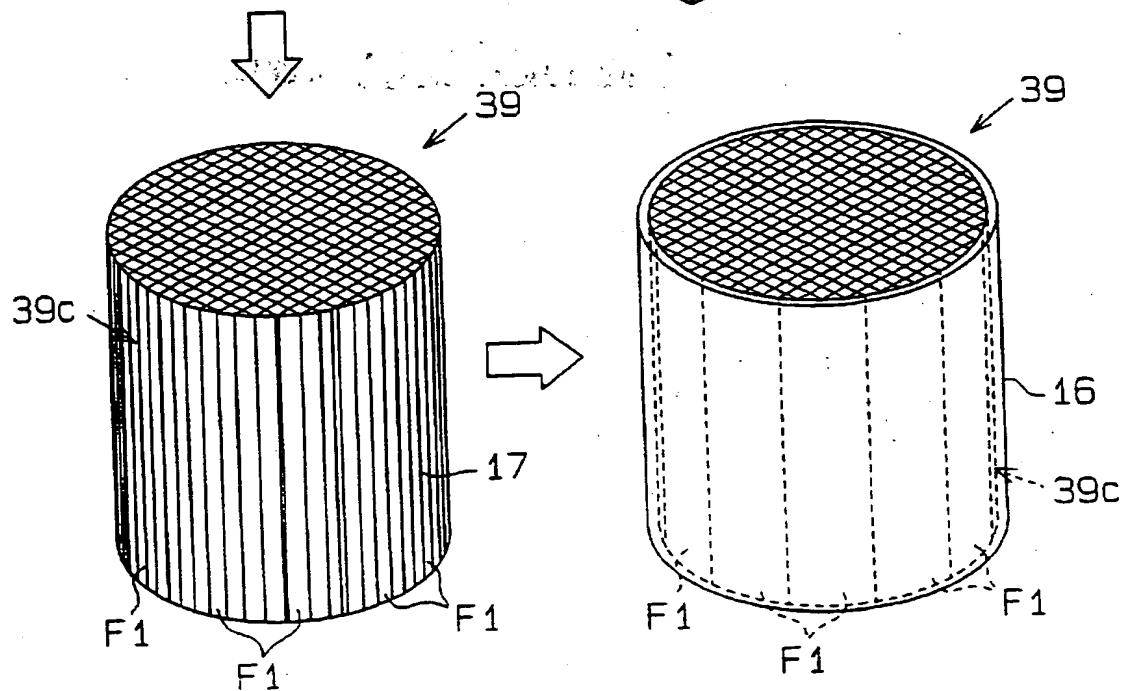
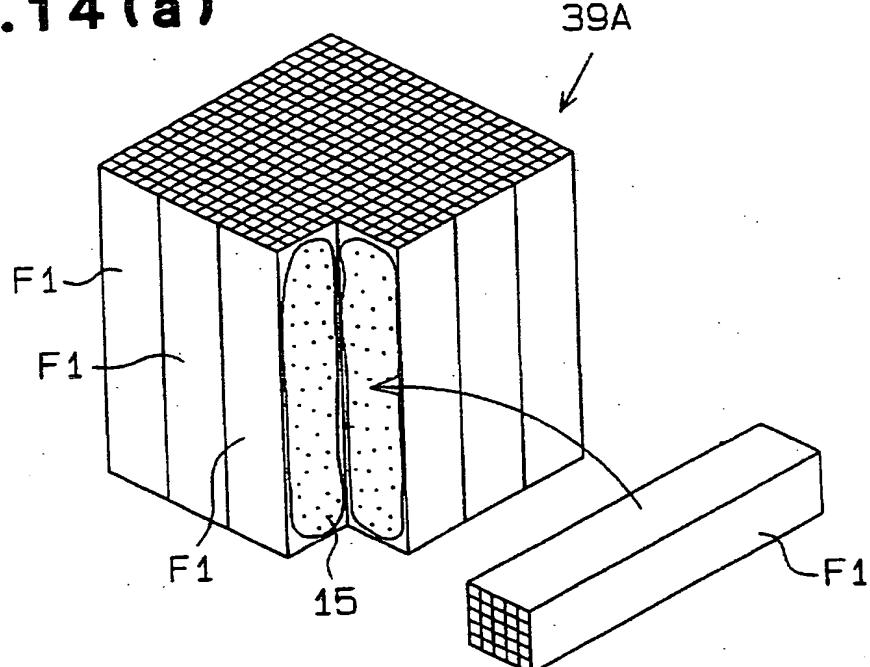
THIS PAGE BLANK (USPTO)

11/19

**Fig.13**

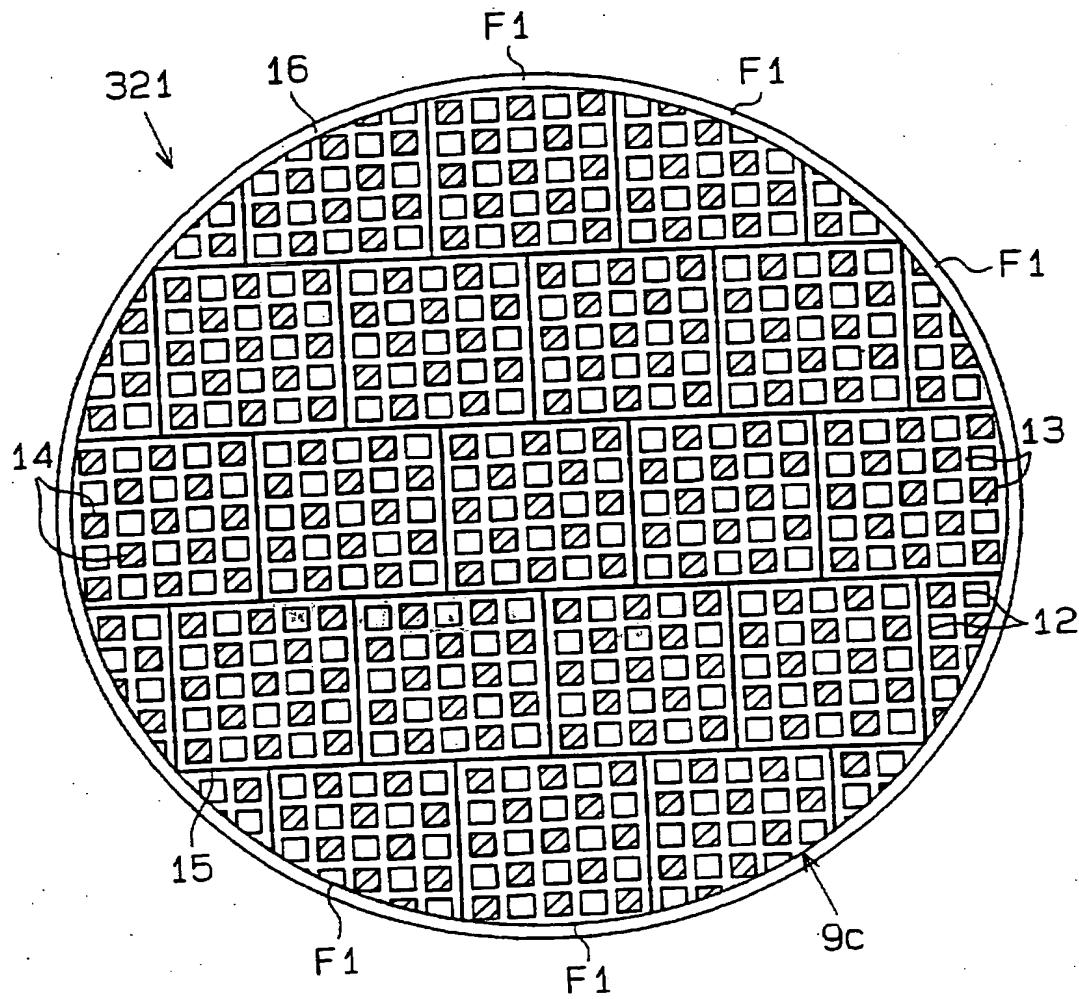
THIS PAGE BLANK (USPTO)

12/19

**Fig.14(a)****Fig.14(b)****Fig.14(c)**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

13/19

**Fig.15**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

14/19

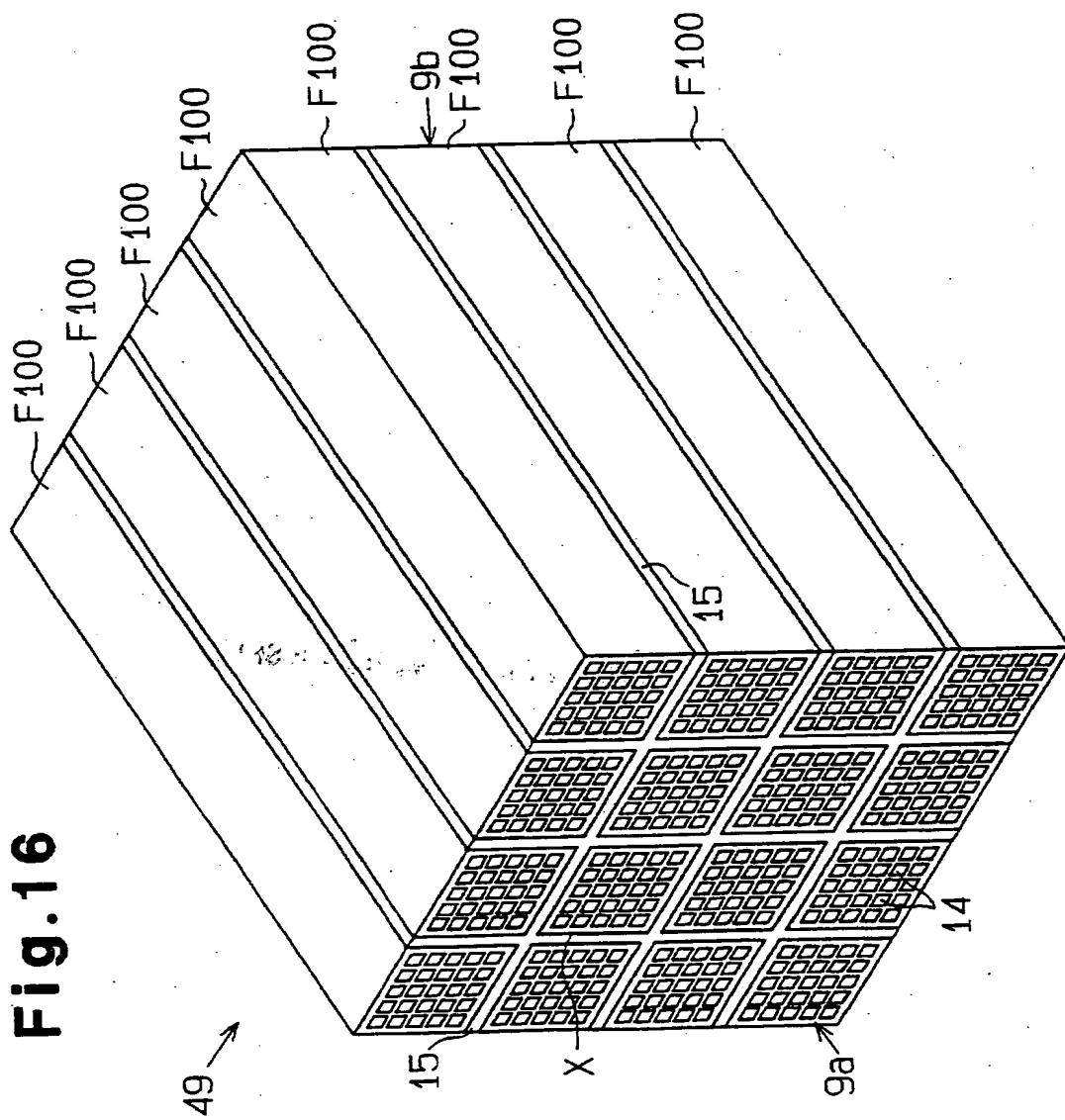
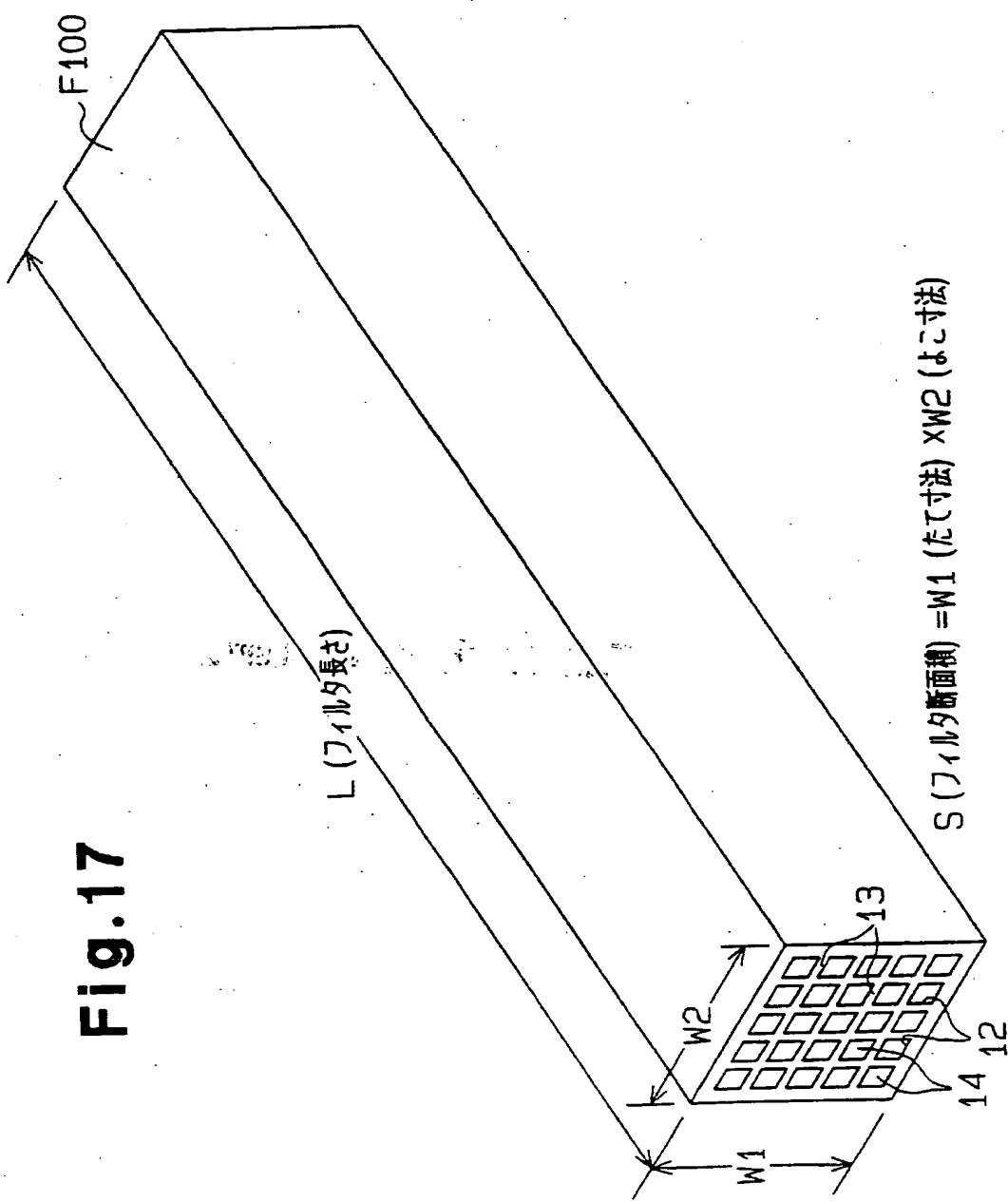


Fig. 16

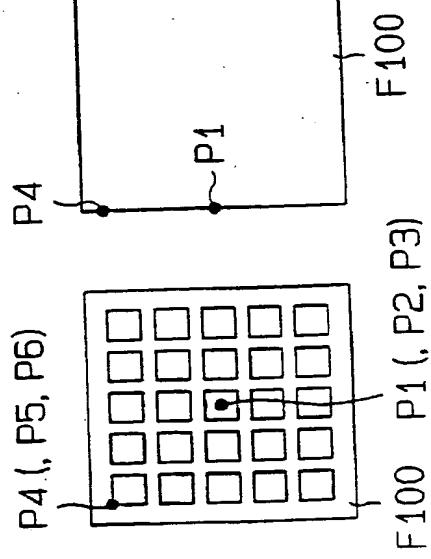
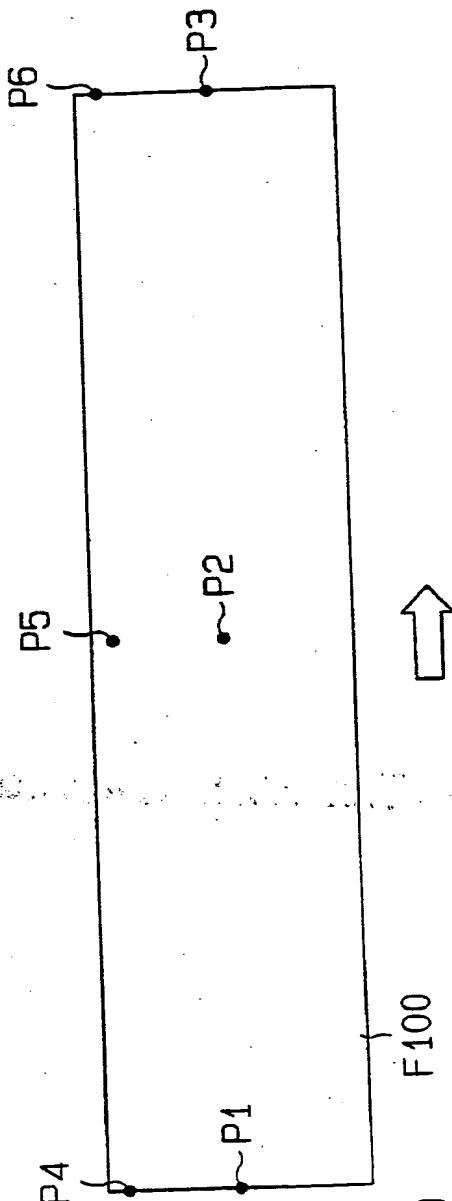
THIS PAGE BLANK (USPTO)

15/19

**Fig.17**

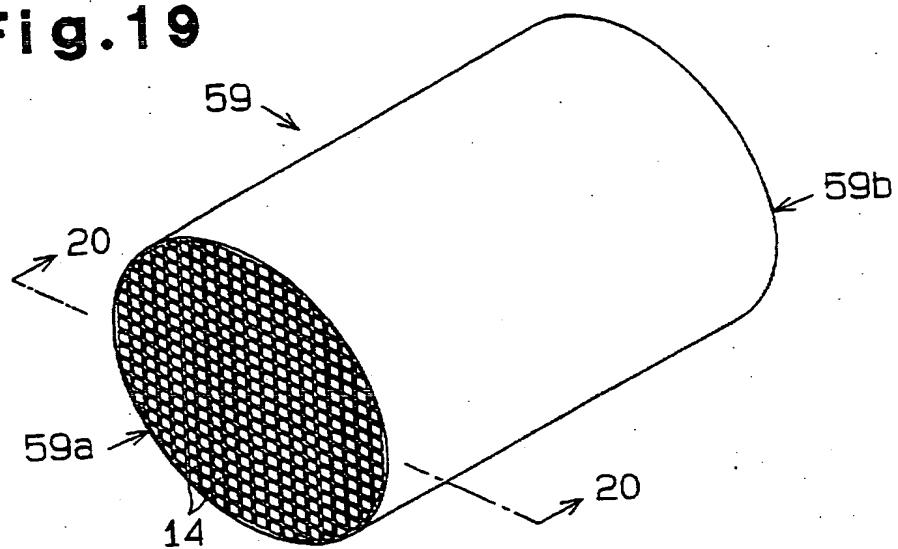
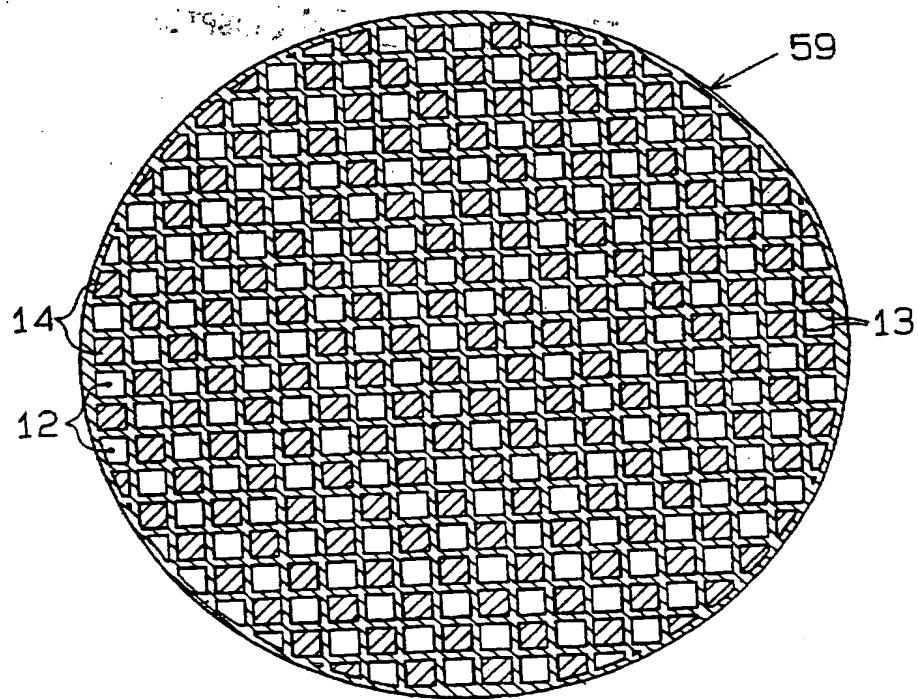
**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

16/19

**Fig.18 (a)****Fig.18 (b)**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

17/19

**Fig.19****Fig.20**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

18/19

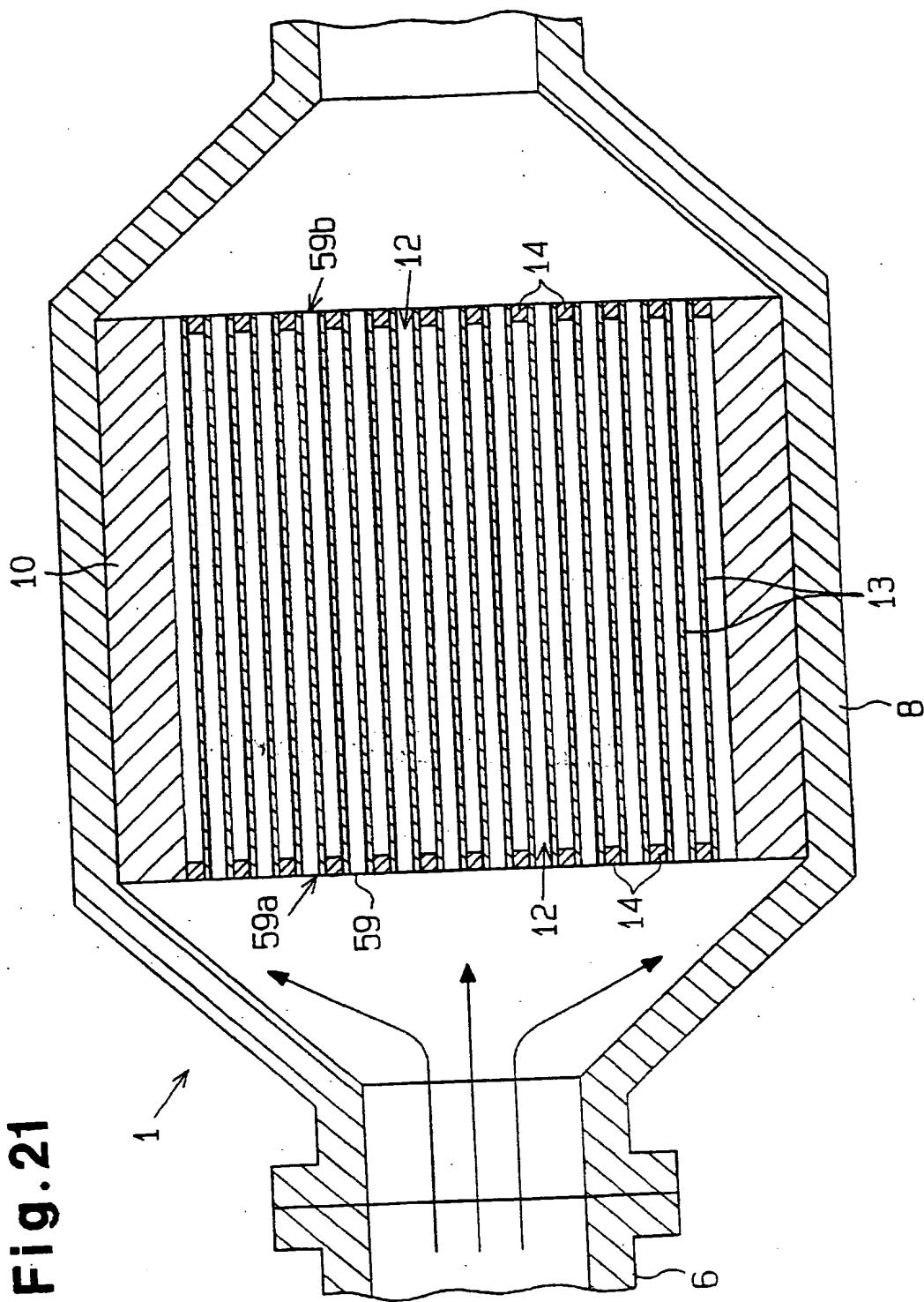
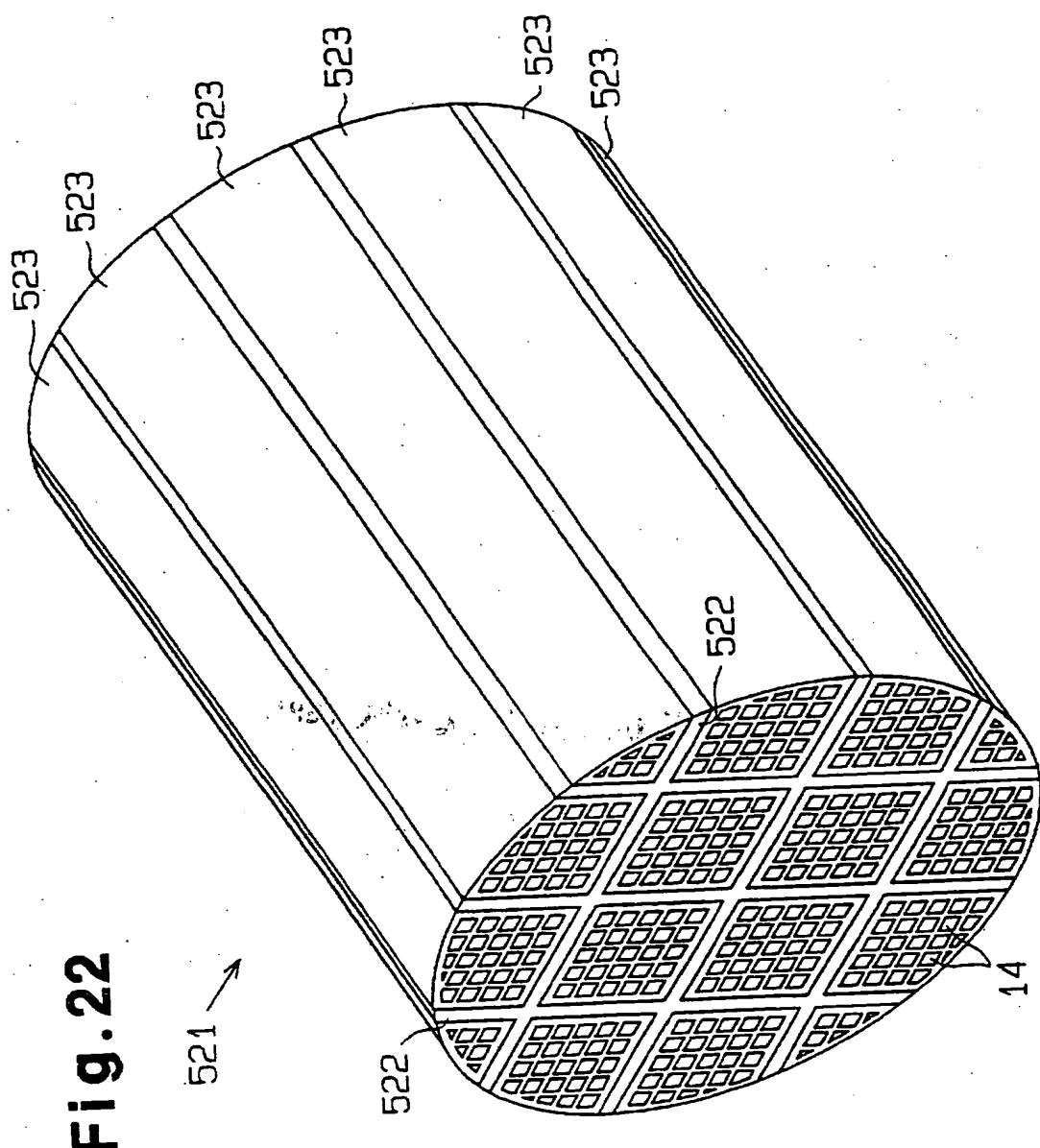


Fig. 21

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

19/19



**Fig. 22**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/JP00/06599

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> B01D39/20

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> B01D39/20Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Keisai Koho 1996-2000Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI (DIALOG)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US, 5914187, A (Ibiden Co., Ltd.,), 22 June, 1999 (22.06.99), See the entire document & JP, 8-28246, A Full text & WO, 97025203, A1 & EP, 816065, A1	1-4, 10-14, 17 5-9, 15, 16, 18-27
A	JP, 11-114339, A (NGK INSULATORS, LTD.), 27 April, 1999 (27.04.99), Claims; Fig. 1 (Family: none)	1-27
A	US, 5853444, A (Thomas Josef Heimbach GmbH & Co.,), 29 December, 1998 (29.12.98), Claims & JP, 10-15323, A Claims & EP, 796830, A1	1-27
EA	JP, 2000-210517, A (NGK INSULATORS, LTD.), 02 August, 2000 (02.08.00), Claims; Fig. 3 (Family: none)	1-27

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

- \* Special categories of cited documents:
- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
06 November, 2000 (06.11.00)Date of mailing of the international search report  
14 November, 2000 (14.11.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office  
  
Facsimile No.Authorized officer  
  
Telephone No.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/06599

C(続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	US, 5 8 5 3 4 4 4, A (Thomas Josef Heim bach GmbH&Co., ) 29. 12月. 1998 (29. 12. 98), Claims & JP, 10-15323, A, 特許請求の範囲 & EP, 796830, A1	1-27
EA	JP, 2000-210517, A (日本碍子株式会社) 2. 8 月. 2000 (02. 08. 00), 特許請求の範囲, 図3 (ファ ミリーなし)	1-27

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

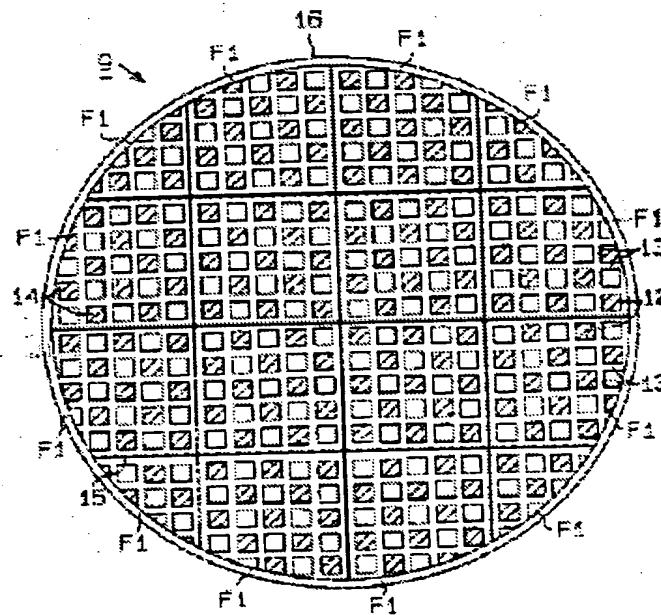
**CERAMIC FILTER AGGREGATE**

Patent number: JP2001162121  
 Publication date: 2001-06-19  
 Inventor: ONO KAZUSHIGE; SHIMADO KOJI  
 Applicant: IBIDEN CO LTD  
 Classification:  
   - international: B01D46/00; F01N3/02  
   - european:  
 Application number: JP20000165978 20000602  
 Priority number(s):

**Abstract of JP2001162121**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a ceramic filter aggregate hardly causing the leakage of fluid at an outer peripheral surface.

**SOLUTION:** The ceramic filter aggregate 9 constitutes a part of waste gas purifying device 1. In the ceramic filter aggregate 9, respective filters F1 are integrated by bonding outer peripheral surfaces themselves of plural filters F1 consisting of porous ceramic sintered body through a ceramic sealing material layer 15. The section of the aggregate 9 is subjected to external size cutting in an almost circular shape as a whole. An unevenness eliminating layer 16 consisting of ceramic material is formed at the outer peripheral surface 9c exposed by the external size cutting.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-162121

(P2001-162121A)

(43)公開日 平成13年6月19日(2001.6.19)

(51)Int.Cl.  
B 01 D 46/00  
F 01 N 3/02

識別記号  
3 0 2  
3 0 1

F I  
B 01 D 46/00  
F 01 N 3/02

テ-マ-<sup>+</sup>(参考)  
3 0 2 3 G 0 9 0  
3 0 1 B 4 D 0 5 8

審査請求 未請求 請求項の数6 OL (全12頁)

(21)出願番号 特願2000-165978(P2000-165978)  
(22)出願日 平成12年6月2日(2000.6.2)  
(31)優先権主張番号 特願平11-277119  
(32)優先日 平成11年9月29日(1999.9.29)  
(33)優先権主張国 日本(JP)

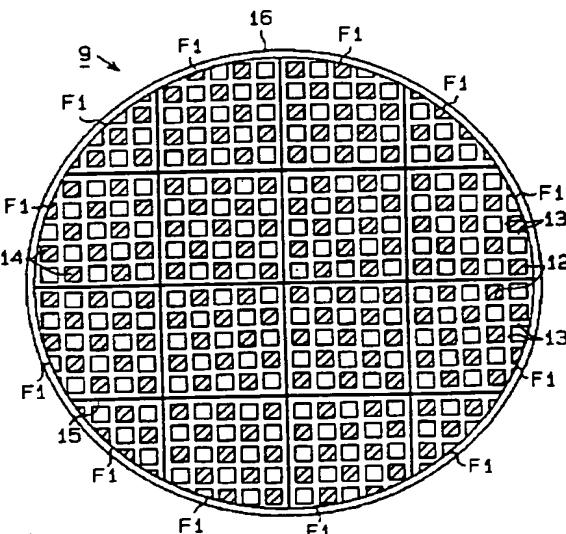
(71)出願人 000000158  
イビデン株式会社  
岐阜県大垣市神田町2丁目1番地  
(72)発明者 大野一茂  
岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1の1 イビデン株式会社大垣北工場内  
(72)発明者 島戸幸二  
岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1の1 イビデン株式会社大垣北工場内  
(74)代理人 100068755  
弁理士 恩田博宣(外1名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】セラミックフィルタ集合体

(57)【要約】

【課題】外周面における流体のリークが起こりにくいセラミックフィルタ集合体を提供すること。  
【解決手段】このセラミックフィルタ集合体9は、排気ガス浄化装置1の一部を構成する。セラミック集合体9は、多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタF1の外周面同士をセラミック質シール材層15を介して接着することにより、各フィルタF1を一体化したものである。集合体9は全体として断面略円形状に外形カットされる。この外形カットにより露出した外周面9cには、セラミック質からなる凹凸解消層16が形成されている。



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタの外周面同士をセラミック質シール材層を介して接着することにより、前記各フィルタを一体化してなる集合体であって、全体として断面略円形状または断面略橢円形状に外形カットされることにより露出した外周面に、セラミック質からなる凹凸解消層が形成されていることを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

【請求項2】前記凹凸解消層の厚さは0.1mm～1.0mmであることを特徴とする請求項1に記載のセラミックフィルタ集合体。

【請求項3】前記凹凸解消層のフィルタ軸線方向における端部は、曲率半径R=0.1mm～10mmの曲面形状になっていることを特徴とする請求項1または2に記載のセラミックフィルタ集合体。

【請求項4】前記シール材層は前記凹凸解消層よりも薄くなるように形成されていることを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項に記載のセラミックフィルタ集合体。

【請求項5】前記凹凸解消層は前記シール材層と同じ材料を用いて形成されていることを特徴とする請求項1乃至4のいずれか1項に記載のセラミックフィルタ集合体。

【請求項6】前記フィルタは、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って互いにすらした状態で配置されていることを特徴とする請求項1乃至5のいずれか1項に記載のセラミックフィルタ集合体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、セラミック焼結体からなる複数のフィルタを接着して一体化した構造のセラミックフィルタ集合体に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】自動車の台数は今世紀に入って飛躍的に増加しており、それに比例して自動車の内燃機関から出される排気ガスの量も急激な増加の一途を辿っている。特にディーゼルエンジンの出す排気ガス中に含まれる種々の物質は、汚染を引き起こす原因となるため、現在では世界環境にとって深刻な影響を与えつつある。また、最近では排気ガス中の微粒子（ディーゼルパーティキュレート）が、ときとしてアレルギー障害や精子数の減少を引き起こす原因となるとの研究結果も報告されている。つまり、排気ガス中の微粒子を除去する対策を講じることが、人類にとって急務の課題であると考えられている。

【0003】このような事情のもと、従来より、多様多種の排気ガス浄化装置が提案されている。一般的な排気ガス浄化装置は、エンジンの排気マニホールドに連結された排気管の途上にケーシングを設け、その中に微細な孔を有するフィルタを配置した構造を有している。フィ

ルタの形成材料としては、金属や合金のほか、セラミックがある。セラミックからなるフィルタの代表例としては、コーディエライト製のハニカムフィルタが知られている。最近では、耐熱性・機械的強度・捕集効率が高い、化学的に安定している、圧力損失が小さい等の利点があることから、多孔質炭化珪素焼結体をフィルタ形成材料として用いることが多い。

【0004】ハニカムフィルタは自身の軸線方向に沿って延びる多数のセルを有している。排気ガスがフィルタを通り抜ける際、そのセル壁によって微粒子がトラップされる。その結果、排気ガス中から微粒子が除去される。

【0005】しかし、多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタは熱衝撃に弱い。そのため、大型化するほどフィルタにクラックが生じやすくなる。よって、クラックによる破損を避ける手段として、複数の小さなフィルタ個片を一体化して1つの大きなセラミックフィルタ集合体を製造する技術が近年提案されている。

【0006】上述の集合体を製造する一般的な方法を簡単に紹介する。まず、押出成形機の金型を介してセラミック原料を連続的に押し出すことにより、四角柱状のハニカム成形体を形成する。ハニカム成形体を等しい長さに切断した後、その切断片を焼成してフィルタとする。焼成工程の後、フィルタの外周面同士をセラミック質シール材層を介して接着することにより、複数のフィルタを束ねて一体化する。以上の結果、所望のセラミックフィルタ集合体が完成する。

【0007】そして、セラミックフィルタ集合体の外周面には、セラミックファイバ等からなるマット状の断熱材が巻き付けられる。この状態で、集合体は排気管の途上に設けられたケーシング内に収容される。

## 【0008】

【発明が解決しようとする課題】ところで、従来のセラミックフィルタ集合体は、全体として断面矩形状を呈している。また、このような集合体を外形カットすることにより、全体として断面略円形状または断面略橤円形状にした状態で使用することも行われている。

【0009】しかし、フィルタは多数のセルを有するものであるため、集合体の外形カットを行うと、新たに露出する集合体の外周面においてセル壁が剥き出しになり、結果として外周面に凹凸ができる。従って、外周面に断熱材を設けた状態で集合体をケーシング内に収容したとしても、フィルタ長手方向に沿って隙間が生じることが避けられない。このため、その隙間を介して排気ガスがリークしやすくなり、排気ガスの処理効率が低下するという問題があった。

【0010】本発明は上記の課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、外周面における流体のリークが起りにくくセラミックフィルタ集合体を提供することにある。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 【0011】

【課題を解決するための手段】上記の課題を解決するために、請求項1に記載の発明では、多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタの外周面同士をセラミック質シール材層を介して接着することにより、前記各フィルタを一体化してなる集合体であって、全体として断面略円形状または断面略楕円形状に外形カットされることにより露出した外周面に、セラミック質からなる凹凸解消層が形成されていることを特徴とするセラミックフィルタ集合体をその要旨とする。

【0012】請求項2に記載の発明は、請求項1において、前記凹凸解消層の厚さは0.1mm～10mmであるとした。請求項3に記載の発明は、請求項1または2において、前記凹凸解消層のフィルタ軸線方向における端部は、曲率半径R=0.1mm～10mmの曲面形状になっているとした。

【0013】請求項4に記載の発明は、請求項1乃至3のいずれか1項において、前記シール材層は前記凹凸解消層はよりも薄くなるように形成されているとした。請求項5に記載の発明は、請求項1乃至4のいずれか1項において、前記凹凸解消層は前記シール材層と同じ材料を用いて形成されているとした。

【0014】請求項6に記載の発明は、請求項1乃至5のいずれか1項において、前記フィルタは、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って互いにずらした状態で配置されているとした。

【0015】以下、本発明の「作用」について説明する。請求項1に記載の発明によると、凹凸解消層によって凹凸が埋められることにより、集合体の外周面がフラットな状態になる。従って、集合体の収容時にその外周面に隙間ができるにくくなる。また、この凹凸解消層はセラミック質からなるので、多孔質セラミック焼結体からなるフィルタとの密着性及び耐熱性に優れている。

【0016】請求項2に記載の発明によると、集合体の製造が困難にならない範囲で、流体のリークを確実に防止することができる。凹凸解消層が薄すぎると、集合体の外周面にある凹凸を完全に埋めることができず、依然としてそこに隙間が残りやすくなる。逆に、凹凸解消層を厚くしようとすると、同層の形成が困難になったり、集合体全体が大径化したりするおそれがある。

【0017】請求項3に記載の発明によると、凹凸解消層のフィルタ軸線方向における端部が所定曲率半径の曲面形状になっているため、使用時のヒートサイクルにより発生した応力の集中が緩和される。従って、応力の一点集中を回避することができ、凹凸解消層におけるクラック等の発生を防止することが可能となる。曲率半径Rが0.1mmを下回ると、使用時のヒートサイクルにより発生した応力が、凹凸解消層の端部の一点に集中しやすくなり、場合によっては凹凸解消層の端部にてクラックが発生する可能性がある。一方、曲率半径Rが10m

mを超えると、凹凸解消層の端部においてその厚さが薄くなる結果、場合によっては流体リークの防止という本来の機能が損なわれるおそれがある。

【0018】請求項4に記載の発明によると、シール材層を凹凸解消層よりも薄くなるように形成しておくことにより、滲過能力及び熱伝導性の低下が未然に防止される。請求項5に記載の発明によると、シール材層と同じ材料を用いて凹凸解消層を形成していることから、凹凸解消層とシール材層との境界部分にクラックが生じにくくなる。また、シール材層形成用の材料とは異なる別の材料を用意する必要がないので、集合体の製造が容易になり、高コスト化も回避される。

【0019】請求項6に記載の発明によると、あらかじめ互いにずらした状態でフィルタを配置しておくことにより、使用時にフィルタにずれが生じにくくなるため、集合体の破壊強度が向上する。また、集合体の径方向に沿った熱伝導性が向上する結果、集合体の外周部分と中心部分との間で温度差ができにくくなる。

【0020】  
【発明の実施の形態】以下、本発明を具体化した一実施形態のディーゼルエンジン用の排気ガス浄化装置1を、図1～図5に基づき詳細に説明する。

【0021】図1に示されるように、この排気ガス浄化装置1は、内燃機関としてのディーゼルエンジン2から排出される排気ガスを浄化するための装置である。ディーゼルエンジン2は、図示しない複数の気筒を備えている。各気筒には、金属材料からなる排気マニホールド3の分岐部4がそれぞれ連結されている。各分岐部4は1つのマニホールド本体5にそれぞれ接続されている。従って、各気筒から排出された排気ガスは一箇所に集中する。

【0022】排気マニホールド3の下流側には、金属材料からなる第1排気管6及び第2排気管7が配設されている。第1排気管6の上流側端は、マニホールド本体5に連結されている。第1排気管6と第2排気管7との間に同じく金属材料からなる筒状のケーシング8が配設されている。ケーシング8の上流側端は第1排気管6の下流側端に連結され、ケーシング8の下流側端は第2排気管7の上流側端に連結されている。排気管6、7の途上にケーシング8が配設されていると把握することができる。そして、この結果、第1排気管6、ケーシング8及び第2排気管7の内部領域が互いに連通し、その中を排気ガスが流れようになっている。

【0023】図1に示されるように、ケーシング8はその中央部が排気管6、7よりも大径となるように形成されている。従って、ケーシング8の内部領域は、排気管6、7の内部領域に比べて広くなっている。このケーシング8内には、セラミックフィルタ集合体9が収容されている。

【0024】集合体9の外周面とケーシング8の内周面

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

5

との間には、断熱材10が配設されている。断熱材10はセラミックファイバを含んで形成されたマット状物であり、その厚さは数mm～数十mmである。断熱材10は熱膨張性を有していることがよい。ここでいう熱膨張性とは、弹性構造を有するため熱応力を解放する機能があることを指す。その理由は、集合体9の最外周部から熱が逃げることを防止することにより、再生時のエネルギーを最小限に抑えるためである。また、再生時の熱によってセラミックファイバを膨張させることにより、排気ガスの圧力や走行による振動等のもたらすセラミックフィルタ集合体9の位置ずれを防止するためである。

【0025】本実施形態において用いられるセラミックフィルタ集合体9は、上記のごとくディーゼルパティキュレートを除去するものであるため、一般にディーゼルパティキュレートフィルタ(DPF)と呼ばれる。図2、図3に示されるように、本実施形態の集合体9は、複数個のフィルタF1を束ねて一体化することによって形成されている。集合体9の中心部分に位置するフィルタF1は四角柱状であって、その外形寸法は33mm×33mm×167mmである。四角柱状のフィルタF1の周囲には、四角柱状でない異型のフィルタF1が複数個配置されている。その結果、全体としてみると円柱状のセラミックフィルタ集合体9(直径135mm前後)が構成されている。

【0026】これらのフィルタF1は、セラミック焼結体の一種である多孔質炭化珪素焼結体である。炭化珪素焼結体を採用した理由は、他のセラミックに比較して、とりわけ耐熱性及び熱伝導性に優れるという利点があるからである。炭化珪素以外の焼結体として、例えば窒化珪素、サイアロン、アルミナ、コーディエライト、ムライト等の焼結体を選択することもできる。

【0027】図3等に示されるように、これらのフィルタF1は、いわゆるハニカム構造体である。ハニカム構造体を採用した理由は、微粒子の捕集量が増加したときでも圧力損失が小さいという利点があるからである。各フィルタF1には、断面略正方形をなす複数の貫通孔12がその軸線方向に沿って規則的に形成されている。各貫通孔12は薄いセル壁13によって互いに仕切られている。セル壁13の外表面には、白金族元素(例えばPt等)やその他の金属元素及びその酸化物等からなる酸化触媒が担持されている。各貫通孔12の開口部は、いずれか一方の端面9a、9bの側において封止体14(ここでは多孔質炭化珪素焼結体)により封止されている。従って、端面9a、9b全体としてみると市松模様状を呈している。その結果、フィルタF1には、断面四角形状をした多数のセルが形成されている。セルの密度は200個/インチ前後に設定され、セル壁13の厚さは0.3mm前後に設定され、セルピッチは1.8mm前後に設定されている。多数あるセルのうち、約半数の

ものは上流側端面9aにおいて開口し、残りのものは下流側端面9bにおいて開口している。

【0028】フィルタF1の平均気孔径は1μm～50μm、さらには5μm～20μmであることが好ましい。平均気孔径が1μm未満であると、微粒子の堆積によるフィルタF1の目詰まりが著しくなる。一方、平均気孔径が50μmを越えると、細かい微粒子を捕集することができなくなるため、捕集効率が低下してしまう。

【0029】フィルタF1の気孔率は30%～70%、さらには40%～60%であることが好ましい。気孔率が30%未満であると、フィルタF1が緻密になりすぎてしまい、内部に排気ガスを流通させることができなくなるおそれがある。一方、気孔率が70%を越えると、フィルタF1中に空隙が多くなりすぎてしまうため、強度的に弱くなりかつ微粒子の捕集効率が低下してしまうおそれがある。

【0030】図2、図3に示されるように、合計16個のフィルタF1は、外周面同士がセラミック質シール材層15を介して互いに接着されている。ここで、本実施形態のセラミック質シール材層15について詳細に述べる。

【0031】前記シール材層15は、少なくとも無機纖維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機纖維と無機粒子とを、前記無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弹性質素材のシール材を用いて形成されることが望ましい。

【0032】前記シール材に含まれる無機纖維としては、シリカーアルミナファイバ、ムライトファイバ、アルミナファイバ及びシリカファイバから選ばれる少なくとも1種以上のセラミックファイバが挙げられる。これらのなかでも、特にシリカーアルミナセラミックファイバを選択することが望ましい。シリカーアルミナセラミックファイバは、弹性に優れるとともに熱応力を吸収する作用を示すからである。

【0033】この場合、シール材におけるシリカーアルミナセラミックファイバの含有量は、固体分で10重量%～70重量%、好ましくは10重量%～40重量%、より好ましくは20重量%～30重量%である。含有量が10重量%未満であると、弹性体としての効果が低下するからである。一方、含有量が70重量%を超えると、熱伝導率の低下を招くとともに、弾力性が低下するからである。

【0034】シリカーアルミナセラミックファイバにおけるショット含有量は、1重量%～10重量%、好ましくは1重量%～5重量%、より好ましくは1重量%～3重量%である。ショット含有量を1重量%未満にすることは、製造上困難だからである。一方、ショット含有量が50重量%を超えると、フィルタF1の外周面が傷付いてしまうからである。

50

THIS PAGE BLANK (USPTO)

【0035】シリカーアルミナセラミックファイバの繊維長は、1mm～100mm、好ましくは1mm～50mm、より好ましくは1mm～20mmである。繊維長が1mm未満であると、弹性構造体を形成することができないからである。繊維長が100mmを超えると、繊維が毛玉のようになって無機微粒子の分散性が悪化するからである。また、シール材層15を薄くすることができなくなり、フィルタF1間の熱伝導性の低下を招くからである。

【0036】前記シール材に含まれる無機バインダとしては、シリカゾル及びアルミナゾルから選ばれる少なくとも1種以上のコロイダルゾルが望ましい。そのなかでも、特にシリカゾルを選択することが望ましい。その理由は、シリカゾルは入手しやすく、焼成により容易にSiO<sub>2</sub>となるため、高温領域での接着剤として好適だからである。しかも、シリカゾルは絶縁性に優れているからである。

【0037】この場合、シール材におけるシリカゾルの含有量は、固体分で1重量%～30重量%、好ましくは1重量%～15重量%、より好ましくは5重量%～9重量%である。含有量が1重量%未満であると、接着強度の低下を招くからである。逆に、含有量が30重量%を超えると、熱伝導率の低下を招くからである。

【0038】前記シール材に含まれる有機バインダとしては親水性有機高分子が好ましく、ポリビニルアルコール、メチルセルロース、エチルセルロース及びカルボメトキシセルロースから選ばれる少なくとも1種以上の多糖類がより好ましい。これらのなかでも、特にカルボキシメチルセルロースを選択することが望ましい。その理由は、カルボキシメチルセルロースは、シール材に好適な流動性を付与するため、常温領域において優れた接着性を示すからである。

【0039】この場合、シール材におけるカルボキシメチルセルロースの含有量は、固体分で0.1重量%～5.0重量%、好ましくは0.2重量%～1.0重量%、より好ましくは0.4重量%～0.6重量%である。含有量が0.1重量%未満であると、十分にマイグレーションを抑制することができないからである。なお、「マイグレーション」とは、被シール体間に充填されたシール材が硬化する際に、シール材中のバインダが、溶媒の乾燥除去に伴って移動する現象のことをいう。一方、含有量が5.0重量%を超えると、高温によって有機バインダが焼失し、シール材層15の強度が低下するからである。

【0040】前記シール材に含まれる無機粒子としては、炭化珪素、窒化珪素及び窒化硼素から選ばれる少なくとも1種以上の無機粉末またはウィスカーを用いた弹性質素材であることが好ましい。このような炭化物や窒化物は、熱伝導率が非常に大きく、セラミックファイバ表面やコロイダルゾルの表面及び内部に介在して熱伝導

性の向上に寄与するからである。

【0041】上記炭化物及び窒化物の無機粒子のなかでも、特に炭化珪素粉末を選択することが望ましい。その理由は、炭化珪素は熱伝導率が極めて高いことに加え、セラミックファイバと馴染みやすいという性質があるからである。しかも、本実施形態では、被シール体であるフィルタF1が同種のもの、即ち多孔質炭化珪素製だからである。

【0042】この場合、炭化珪素粉末の含有量は、固体分で3重量%～80重量%、好ましくは10重量%～60重量%、より好ましくは20重量%～40重量%である。含有量が3重量%未満であると、シール材層15の熱伝導率の低下を招くからである。一方、含有量が80重量%を超えると、高温時における接着強度の低下を招くからである。

【0043】炭化珪素粉末の粒径は、0.01μm～100μm、好ましくは0.1μm～15μm、より好ましくは0.1μm～10μmである。粒径が100μmを超えると、接着力及び熱伝導性の低下を招くからである。一方、粒径が0.01μm未満であると、シール材のコスト高につながるからである。

【0044】図2等に示されるように、本実施形態のセラミックフィルタ集合体9の外周面9cには、セラミック質からなる凹凸解消層16が形成されている。この凹凸解消層16は、少なくともセラミック繊維及びバインダをその成分として含むセラミック材料を用いて形成される。前記セラミック材料中には、炭化珪素、窒化珪素、窒化硼素等のような無機粒子が含まれていることがよい。前記バインダとしては、シリカゾルやアルミナゾル等のような無機バインダを用いることがよいか、多糖類等に代表される有機バインダを用いることがよい。また、前記セラミック材料は、三次元的に交錯するセラミック繊維と無機粒子とがバインダを介して互いに結合されたものであることが望ましい。なお、凹凸解消層16はシール材層15と同種の材料を用いて形成されることが望ましく、特には全く同じ材料を用いて形成されることが極めて望ましい。

【0045】凹凸解消層16の厚さは0.1mm～10mmであることがよく、さらには0.3mm～2mmであることがよく、特には0.5mm～1mmであることがよい。凹凸解消層16が薄すぎると、セラミックフィルタ集合体9の外周面9cにある凹凸17を完全に埋めることができず、依然としてそこに隙間が残りやすくなるからである。逆に、凹凸解消層16を厚くしようとすると、層形成が困難になったり、集合体9全体が大径化したりするおそれがあるからである。

【0046】なお、シール材層15は凹凸解消層16よりも薄くなるように形成されることが好ましく、具体的には0.3mm～3mmの範囲内でそのように形成されることが望ましい。シール材層15を凹凸解消層16よ

THIS PAGE BLANK (USPTO)

りも薄くなるように形成しておくことにより、濾過能力及び熱伝導性の低下が未然に防止されるからである。

【0047】ところで、凹凸解消層16のフィルタ軸線方向における端部は、曲面形状になっていることが好ましい(図4にて示される曲面部18を参照)。より具体的にいようと、前記端部は、曲率半径R=0.1mm~1mmの曲面形状、さらには0.5mm~2mmの曲面形状になっていることが好ましい。

【0048】曲率半径Rが0.1mmを下回ると、使用時のヒートサイクルにより発生した応力が、凹凸解消層16の端部の一点に集中しやすくなり、場合によっては凹凸解消層16の端部にてクラックや欠けが発生する可能性があるからである。

【0049】一方、曲率半径Rが10mmを超えると、凹凸解消層16の端部においてその厚さが薄くなる結果、場合によっては排気ガスのリークの防止という本来の機能が損なわれるおそれがあるからである。

【0050】なお、曲面部18における曲率半径Rの値は、凹凸解消層16の厚さが厚いときほど大きめに設定されることがよい。次に、上記のセラミックフィルタ集合体9を製造する手順を図5に基づいて説明する。

【0051】まず、押出成形工程で使用するセラミック原料スラリー、端面封止工程で使用する封止用ベースト、フィルタ接着工程で使用するシール材層形成用ペースト、凹凸解消層形成工程で使用する凹凸解消層形成用ペーストをあらかじめ作製しておく。シール材層形成用ペーストを凹凸解消層の形成にも使用する場合には、凹凸解消層形成用ペーストは作製しておかなくてよい。

【0052】セラミック原料スラリーとしては、炭化珪素粉末に有機バインダ及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練したものを用いる。封止用ペーストとしては、炭化珪素粉末に有機バインダ、潤滑剤、可塑剤及び水を配合し、かつ混練したものを用いる。シール材層形成用ペースト(凹凸解消層形成用ペーストについても同様。)としては、無機纖維、無機バインダ、有機バインダ、無機粒子及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練したもの用いる。

【0053】次に、前記セラミック原料スラリーを押出成形機に投入し、かつ金型を介してそれを連続的に押し出す。その後、押出成形されたハニカム成形体を等しい長さに切断し、四角柱状のハニカム成形体切断片を得る。さらに、切断片の各セルの片側開口部に所定量ずつ封止用ペーストを充填し、各切断片の両端面を封止する。

【0054】続いて、温度・時間等を所定の条件に設定して本焼成を行い、ハニカム成形体切断片及び封止体14を完全に焼結させる。このようにして得られる多孔質炭化珪素焼結体製のフィルタF1は、この時点ではまだ全てのものが四角柱状である。

【0055】なお、平均気孔径を6μm~15μmとし

かつ気孔率を35%~50%とするために、本実施形態では焼成温度を2100°C~2300°Cに設定している。また、焼成時間を0.1時間~5時間に設定している。また、焼成時の炉内雰囲気を不活性雰囲気とし、そのときの雰囲気の圧力を常圧としている。

【0056】次に、必要に応じてフィルタF1の外周面にセラミック質からなる下地層を形成した後、さらにその上にシール材層形成用ペーストを塗布する。そして、このようなフィルタF1を16個用い、その外周面同士を互いに接着して一体化する。この時点では、図5(a)に示されるように、セラミックフィルタ集合体9Aは全体として断面正方形状を呈している。

【0057】続く外形カット工程では、前記フィルタ接着工程を経て得られた断面正方形状の集合体9Aを研削し、外周部における不要部分を除去してその外形を整える。その結果、図5(b)に示されるように、断面円形状のセラミックフィルタ集合体9が得られる。なお、外形カットによって新たに露出した面においては、セル壁13が部分的に剥き出しになり、結果として外周面9cに凹凸17ができる。本実施形態においてできる凹凸17は、0.5mm~1mm程度のものであって、集合体9の軸線方向(即ちフィルタF1の長手方向)に沿って延びる突条と溝とからなる。

【0058】続く凹凸解消層形成工程では、前記シール材層形成用ペーストを凹凸解消層形成用ペーストとして用いるとともに、当該ペーストを集合体9の外周面9cの上に均一に塗布する。この後、必要に応じて曲面部形成工程を行い、凹凸解消層16のフィルタ軸線方向における両端部に曲面部18を形成する。具体的には、例えば凹凸解消層16における両端部をブラシ等の器具を用いてブラッシングすることにより当該部分を若干擦り取る、という手法がある。このような工程を経ると、好適な形状の曲面部18が形成されるばかりでなく、端面9a、9bにはみ出していた余剰のペーストも除去される。

【0059】そして、以上の結果、図5(c)に示されるセラミックフィルタ集合体9が完成する。次に、上記のセラミックフィルタ集合体9による微粒子トラップ作用について簡単に説明する。

【0060】ケーシング8内に収容されたセラミックフィルタ集合体9には、上流側端面9aの側から排気ガスが供給される。第1排気管6を経て供給されてくる排気ガスは、まず、上流側端面9aにおいて開口するセル内に流入する。次いで、この排気ガスはセル壁13を通過し、それに隣接しているセル、即ち下流側端面9bにおいて開口するセルの内部に到る。そして、排気ガスは、同セルの開口を介してフィルタF1の下流側端面9bから流出する。しかし、排気ガス中に含まれる微粒子はセル壁13を通過することができず、そこにトラップされてしまう。その結果、浄化された排気ガスがフィルタF

THIS PAGE BLANK (USPTO)

1の下流側端面9bから排出される。浄化された排気ガスは、さらに第2排気管7を通過した後、最終的には大気中へと放出される。

## 【0061】

## 【実施例及び比較例】(実施例1)

(1)  $\alpha$ 型炭化珪素粉末51.5重量%と $\beta$ 型炭化珪素粉末22重量%とを湿式混合し、得られた混合物に有機バインダ(メチルセルロース)と水とをそれぞれ6.5重量%、20重量%ずつ加えて混練した。次に、前記混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練したものを押出成形することにより、ハニカム状の生成形体を得た。

【0062】(2) 次に、この生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、成形体の貫通孔12を多孔質炭化珪素焼結体製の封止用ペーストによって封止した。次いで、再び乾燥機を用いて封止用ペーストを乾燥させた。端面封止工程に統いて、この乾燥体を400°Cで脱脂した後、さらにそれを常圧のアルゴン雰囲気下において2200°Cで約3時間焼成した。その結果、多孔質ハニカム状の炭化珪素製フィルタF1を得た。

【0063】(3) セラミックファイバ(アルミナシリケートセラミックファイバ、ショット含有率3%、繊維長さ0.1mm~100mm)23.3重量%、平均粒径1.0μmの窒化珪素粉末30重量%、無機バインダとしてのアルミニナゾル(アルミニナゾルの換算量は20%)7重量%、有機バインダとしてのポリビニルアルコール0.5重量%及びアルコール37.5重量%を混合・混練したものと、前記兼用ペーストとして使用した。それ以外の事項を、前記兼用ペーストとして使用した。セラミックファイバについては実施例1に準ずるようにして、セラミックフィルタ集合体9を作製した。凹凸解消層16の厚さは0.6mmに設定し、曲面部18の曲率半径Rは約1mmに設定した。

【0064】(4) 次に、フィルタF1の外周面上に前記兼用ペーストを均一に塗布するとともに、フィルタF1の外周面同士を互いに密着させた状態で、50°C~100°C×1時間の条件にて乾燥・硬化させる。その結果、ここではシール材層15の厚さを1.0mmに設定した。

【0065】(5) 次に、外形カットを実施して外形を整えることにより、断面円形状のセラミックフィルタ集合体9を作製した後、その露出した外周面9cに前記兼用ペーストを均一に塗布した。そして、50°C~100°C×1時間の条件で乾燥・硬化して、厚さ0.6mmの凹凸解消層16を形成し、集合体9を完成させた。

【0066】そしてこの後、凹凸解消層16の端部を均一にブラッシングすることによりその部分を若干擦り取って、曲率半径R=約1mmの曲面部18を形成した。そして、上記のようにして得られた集合体9の各所を肉眼で観察したところ、外周面9cの凹凸17は凹凸解消層16によってほぼ完全に埋められており、外周面9cはフラットな状態になっていた。また、凹凸解消層16

とフィルタF1との境界部分、凹凸解消層16とシール材層15との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかった。従って、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。勿論、凹凸解消層16自体にもクラックや欠けは認められなかった。

【0067】そこで、断熱材10を巻き付けた状態で集合体9をケーシング8内に収容したところ、集合体9の外周面9cには隙間ができなかつた。また、実際に排気ガスを供給してみたところ、外周面9cの隙間を介して下流側に排気ガスがリークしていないことがわかった。従って、本実施例によれば、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(実施例2) 実施例2では、セラミックファイバ(ムライトファイバ、ショット含有率5重量%、繊維長さ0.1mm~100mm)25重量%、平均粒径1.0μmの窒化珪素粉末30重量%、無機バインダとしてのアルミニナゾル(アルミニナゾルの換算量は20%)7重量%、有機バインダとしてのポリビニルアルコール0.5重量%及びアルコール37.5重量%を混合・混練したものと、前記兼用ペーストとして使用した。それ以外の事項を、前記兼用ペーストとして使用した。セラミックフィルタ集合体9を作製した。凹凸解消層16の厚さは0.6mmに設定し、曲面部18の曲率半径Rは約1mmに設定した。

【0068】そして、実施例1と同様の肉眼観察を行ったところ、外周面9cの凹凸17は凹凸解消層16によってほぼ完全に埋められていた。また、凹凸解消層16とフィルタF1との境界部分、凹凸解消層16とシール材層15との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかった。従って、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。勿論、凹凸解消層16自体にもクラックや欠けは認められなかった。

【0069】また、集合体9の使用時においてその外周面9cには隙間ができず、しかも隙間を介した排気ガスのリークも起らぬことがわかった。従って、実施例2も実施例1と同様に、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(実施例3) 実施例3は、セラミックファイバ(アルミニナファイバ、ショット含有率4重量%、繊維長さ0.1mm~100mm)23重量%、平均粒径1μmの窒化珪素粉末35重量%、無機バインダとしてのアルミニナゾル(アルミニナゾルの換算量は20%)8重量%、有機バインダとしてのエチルセルロース0.5重量%及びアセトン35.5重量%を混合・混練したものを、前記兼用ペーストとして使用した。それ以外の事項については実施例1に準ずるようにして、セラミックフィルタ集合体9を作製した。凹凸解消層16の厚さは0.6mmに設定し、曲面部18の曲率半径Rは約1mmに設定し

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

た。

【0070】そして、実施例1と同様の肉眼観察を行ったところ、外周面9cの凹凸17は凹凸解消層16によってほぼ完全に埋められていた。また、凹凸解消層16とフィルタF1との境界部分、凹凸解消層16とシール材層15との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかった。従って、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。勿論、凹凸解消層16自体にもクラックや欠けは認められなかった。

【0071】また、集合体9の使用時においてその外周面9cには隙間ができず、しかも隙間を介した排気ガスのリークも起らなかったことがわかった。従って、実施例3も実施例1と同様に、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(実施例4、5) 実施例4では、凹凸解消層16の厚さを0.4mmに設定するとともに、曲面部18の曲率半径Rを約0.2mmに設定した。それ以外の事項については実施例1と準ずるようにして、セラミックフィルタ集合体9を作製した。

【0072】実施例5では、凹凸解消層16の厚さを7mmに設定するとともに、曲面部18の曲率半径Rを約8mmに設定した。それ以外の事項については実施例1と準ずるようにして、セラミックフィルタ集合体9を作製した。

【0073】これらについて実施例1と同様の肉眼観察を行ったところ、クラックや欠けは認められなかった。また、集合体9の使用時においてその外周面9cには隙間ができず、しかも隙間を介した排気ガスのリークも起らなかったことがわかった。従って、実施例4、5も実施例1と同様に、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(比較例) 比較例では、外周面9cに凹凸解消層16を設けないこととし、それ以外の事項については基本的に実施例1に準ずるようにして、セラミックフィルタ集合体を作製した。

【0074】そして、実施例1と同様の肉眼観察を行ったところ、外周面9cには凹凸17が残っていた。ゆえに、集合体の使用時においてその外周面9cには隙間ができ、その隙間を介した排気ガスのリークが起こることが確認された。従って、各実施例1～3と比較して、排気ガスの処理効率に劣ることが明らかであった。

【0075】従って、本実施形態の実施例によれば以下ののような効果を得ることができる。

(1) 各実施例では、凹凸解消層16によって凹凸17が埋められることにより、集合体9の外周面9cがフラットな状態になっている。従って、集合体9の収容時にその外周面9cに隙間ができにくく、その隙間を介した排気ガスのリークが防止される。以上の結果、排気ガスの処理効率に優れたセラミックフィルタ集合体9、ひい

ては排気ガスの処理効率に優れた排気ガス浄化装置1を実現することができる。

【0076】また、この凹凸解消層16はセラミック質からなるので、同じく多孔質セラミック焼結体からなるフィルタF1との密着性及び耐熱性にも優れている。従って、集合体9が数百℃の高温に晒されたとしても、凹凸解消層16が焼失・変質するようなことがなく、好適な密着強度も維持される。

【0077】(2) 各実施例では、凹凸解消層16の厚さを0.1mm～10mmという好適範囲内に設定しているため、集合体9の製造が困難にならない範囲で、排気ガスのリークを確実に防止することができる。

【0078】(3) 各実施例では、凹凸解消層16における曲面部18の曲率半径Rを、0.1mm～10mmという好適範囲に設定している。このため、使用時のヒートサイクルによって応力が発生したとしても、その発生した応力の凹凸解消層16の端部への集中が緩和される。従って、当該部分への応力の集中を回避することができ、凹凸解消層16におけるクラックや欠けの発生を防止することが可能となる。このため、排気ガス漏れの発生を防止しつつ、凹凸解消層16におけるクラック等の発生を確実に防止することができる。

【0079】(4) 各実施例では、シール材層15を凹凸解消層16よりも薄くなるように形成しているため、透過能力及び熱伝導性の低下を未然に防止することができる。

【0080】(5) 各実施例では、シール材層15と同じ材料を用いて凹凸解消層16を形成している。このため、凹凸解消層16とシール材層15との熱膨張係数が等しくなる等の理由により、両者15、16の境界部分にクラックが生じにくくなる。つまり、当該境界部分に高い接着性、シール性、信頼性が確保される。

【0081】また、シール材層形成用ペーストとは別に、凹凸解消層形成用ペーストを用意する必要がないので、集合体9の製造が容易になり、全体の高コスト化を回避することができる。

【0082】(6) 各実施例では、シール材層15及び凹凸解消層16を形成するための材料として、次のようなものを用いている。即ち、少なくとも無機纖維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機纖維と無機粒子とを、前記無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弾性質素材を用いている。

【0083】このような材料には下記のような利点がある。即ち、低温域及び高温域の両方において十分な接着強度を期待することができる。また、この材料は弾性質素材であることから、集合体9に熱応力が加わるときでも、その熱応力を確実に開放することができる。さらに、この材料は熱伝導性に優れるため、熱が集合体9の全体に均一にかつ速やかに伝導しやすく、効率のよい排

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

気ガス処理を実現することができる。

【0084】なお、本発明の実施形態は以下のように変更してもよい。

・ フィルタF1の組み合わせ数は、前記実施形態のように16個でなくてもよく、任意の数にすることが可能である。この場合、サイズ・形状等の異なるフィルタF1を適宜組み合わせて使用することも勿論可能である。

【0085】・ 図6に示される別例のセラミックフィルタ集合体21のように、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って各フィルタF1をあらかじめ互いにすり合った状態にして、各フィルタF1を接着しつつ一体化してもよい。このようにした場合には、ケーシング8への収容時にフィルタF1にずれが生じにくくなるため、集合体21の破壊強度が向上する。前記実施形態とは異なり、別例ではシール材層15が十字状に交わる箇所ができず、このことが破壊強度の向上に寄与しているものと考えられる。また、集合体21の径方向に沿った熱伝導性が向上する結果、集合体21の外周部分と中心部分との間で温度差ができるにくくなる。よって、集合体21が均等に加熱されるようになり、外周部分における微粒子の燃え残りが生じにくくなる。

【0086】・ 凹凸解消層16はシール材層15と同種のセラミック材料を用いて形成されていくてもよく、異種のセラミック材料を用いて形成されていてもよい。

・ 凹凸解消層16はシール材層15と等しい厚さとなるように形成されてもよく、さらにはシール材層15よりも厚くなるように形成されていてもよい。

【0087】・ 凹凸解消層16の形成方法として、実施形態では塗布法を採用している。この方法に限定されることはなく、例えば印刷法、焼き付け法、ディップ法、カーテンコート法等を採用して凹凸解消層16を形成するようにしてもよい。

【0088】・ フィルタF1は前記実施形態にて示したようなハニカム状構造を有するもののみに限られず、例えば三次元網目構造、フォーム状構造、ヌードル状構造、ファイバ状構造等であってもよい。

【0089】・ 外形カット工程前におけるフィルタF1の形状は、実施形態のような四角柱状に限定されることはなく、三角柱状や六角柱状等であっても構わない。また、外形カット工程によって集合体9Aの全体形状を断面円形状に加工するのみならず、例えば断面橢円形状等に加工してもよい。

【0090】・ 曲面部18を形成する手法としては、実施形態にて示したようなブラシを用いたブラッシングのみに限定されない。例えば、ブラシ以外の器具（例えば刷毛、ヘラ等）を用いて当該部分の凹凸解消層16を削ぎ取る、等の手法を採用することも可能である。さらには、上記のような器具を用いた手法に代え、器具を用いない手法（具体的には、サンドblast等のような砥

粒を用いた手法など）を採用することも可能である。

【0091】・ 特にその必要がなければ、実施形態で行っていたような曲面部形成工程を省略しても構わない。

・ 実施形態においては、本発明のセラミックフィルタ集合体を、ディーゼルエンジン2に取り付けられる排気ガス浄化装置用フィルタとして具体化していた。勿論、本発明のセラミックフィルタ集合体は、排気ガス浄化装置用フィルタ以外のものとして具体化されることができ、例えば熱交換器用部材、高温流体や高温蒸気のための濾過フィルタ等として具体化されることがある。

【0092】次に、特許請求の範囲に記載された技術的思想のほかに、前述した実施形態によって把握される技術的思想を以下に列挙する。

(1) 請求項1乃至6のいずれか1つにおいて、前記集合体はディーゼルパティキュレートフィルタであること。

【0093】(2) 請求項1乃至6、技術的思想1のいずれか1つにおいて、前記フィルタは、多孔質炭化珪素焼結体からなるハニカムフィルタであること。従って、この技術的思想2に記載の発明によれば、圧力損失が小さく、しかも耐熱性及び熱伝導性に優れたものとすることができる。

【0094】(3) 請求項1乃至6、技術的思想1、2のいずれか1つにおいて、前記シール材層は、少なくとも無機繊維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機繊維と無機粒子とを、前記無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弹性質素材のシール材によって形成されていること。

【0095】(4) 請求項1乃至6、技術的思想1、2のいずれか1つにおいて、前記シール材は、固形分で10重量%～70重量%のシリカーアルミナセラミックファイバ、1重量%～30重量%のシリカゾル、0.1重量%～5.0重量%のカルボメトキシセルロース及び3重量%～80重量%の炭化珪素粉末からなること。

【0096】(5) 内燃機関の排気管の途上に設けられたケーシング内に、多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタの外周面同士をセラミック質シール材層を介して接着することにより前記各フィルタを一体化してなるセラミックフィルタ集合体を収容するとともに、その集合体の外周面と前記ケーシングの内周面とがなす隙間に断熱材を充填した排気ガス浄化装置において、前記集合体は全体として断面略円形状または断面橢円形状に外形カットされるとともに、その外形カットにより露出した外周面には、セラミック質からなる凹凸解消層が形成されていることを特徴とする排気ガス浄化装置。従って、この技術的思想5に記載の発明によれば、強度、信頼性等に優れた実用的な装置を提供することができる。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 【0097】

【発明の効果】以上詳述したように、請求項1～6に記載の発明によれば、外周面における流体のリークが起りにくくセラミックフィルタ集合体を提供することができる。

【0098】請求項2に記載の発明によれば、集合体の製造が困難にならない範囲で、流体のリークを確実に防止することができる。請求項3に記載の発明によれば、凹凸解消層におけるクラック等の発生及び流体リークを防止することができる。

【0099】請求項4に記載の発明によれば、滻過能力及び熱伝導性の低下を未然に防止することができる。請求項5に記載の発明によれば、凹凸解消層とシール材層との境界部分における流体リークの防止、集合体の製造容易化、集合体の高コスト化の防止を達成することができる。

【0100】請求項6に記載の発明によれば、集合体の\*

\* 破壊強度の向上及び均熱化を図ることができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明を具体化した一実施形態の排気ガス浄化装置の全体概略図。

【図2】実施形態のセラミックフィルタ集合体の側面図。

【図3】前記排気ガス浄化装置の要部拡大断面図。

【図4】凹凸解消層へのブラッシングを施したセラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

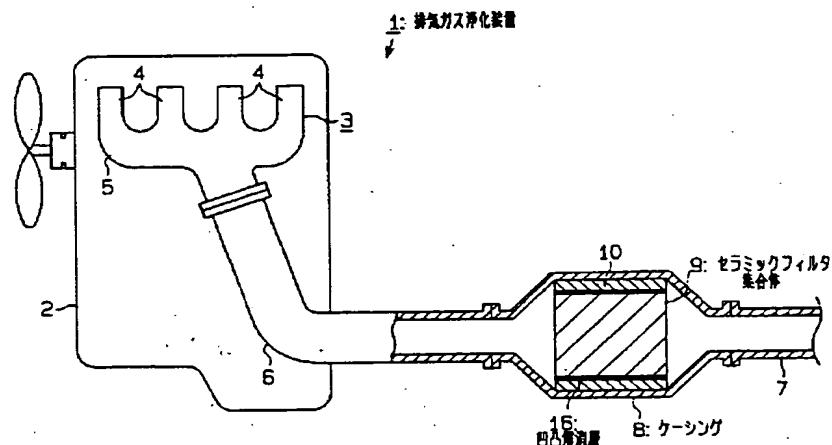
【図5】(a), (b), (c)はセラミックフィルタ集合体の製造工程を説明するための概略斜視図。

【図6】別例のセラミックフィルタ集合体の側面図。

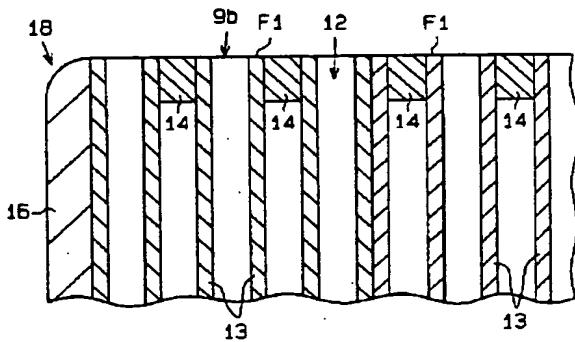
## 【符号の説明】

9, 21…セラミックフィルタ集合体、9c…セラミックフィルタ集合体の外周面、15…セラミック質シール材層、16…凹凸解消層、F1…フィルタ。

【図1】

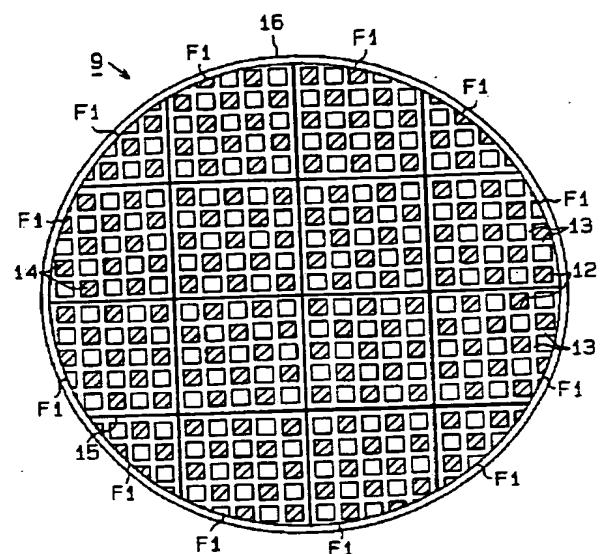


【図4】

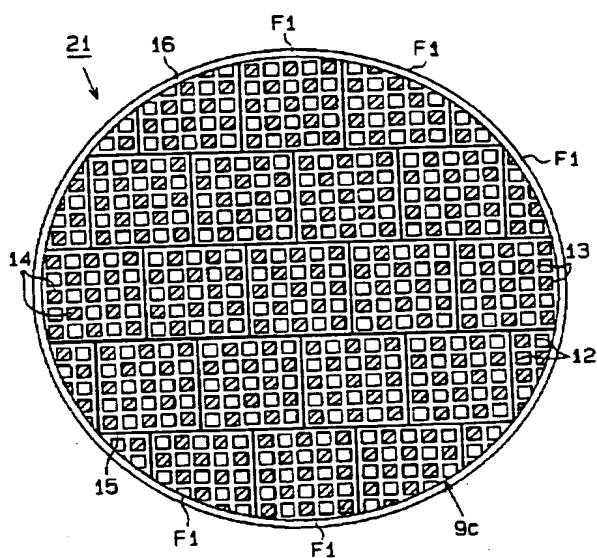


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

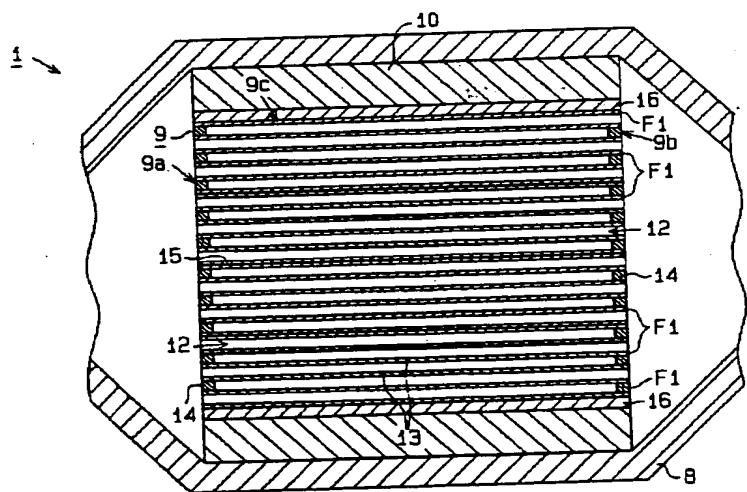
【図2】



【図6】

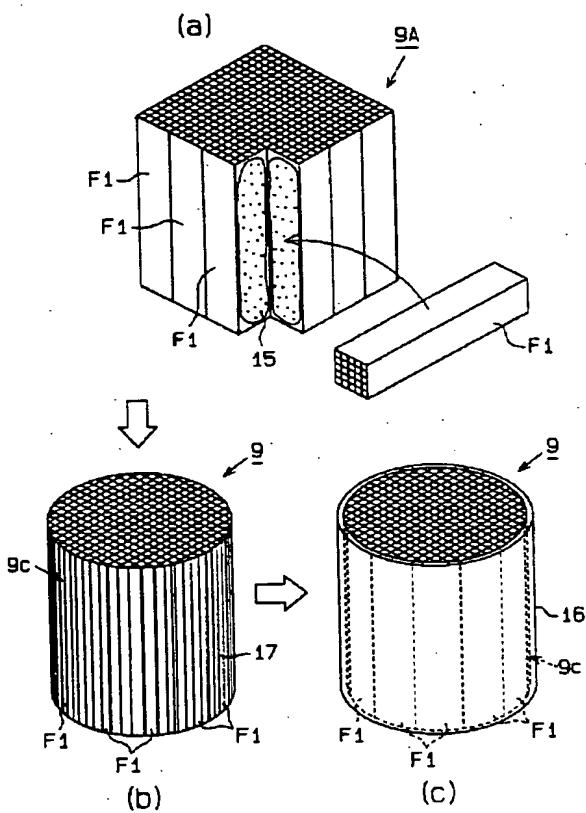


【図3】



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

【図5】

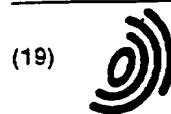



---

フロントページの続き

F ターム(参考) 3G090 AA03 BA01  
 4D058 JA32 JA38 JB06 KA03 KA11  
 KA12 KA13 KA23 KA25 KA27  
 SA08 TA06

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



(19) Europäisches Patentamt

European Patent Office

Office européen des brevets



(11) EP 1 142 619 A1

(12)

**EUROPEAN PATENT APPLICATION**  
published in accordance with Art. 158(3) EPC

(43) Date of publication:

10.10.2001 Bulletin 2001/41

(51) Int Cl. 7: B01D 39/20

(21) Application number: 00962846.2

(86) International application number:  
PCT/JP00/06599

(22) Date of filing: 26.09.2000

(87) International publication number:  
WO 01/23069 (05.04.2001 Gazette 2001/14)

(84) Designated Contracting States:

AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU  
MC NL PT SE

(72) Inventors:

- OHNO, Kazushige, Ibiden Co., Ltd  
Ibi-gun, Gifu 501-0695 (JP)
- SHIMATO, Koji, Ibiden Co., Ltd  
Ibi-gun, Gifu 501-0695 (JP)
- TSUJI, Masahiro, Ibiden Co., Ltd  
Ibi-gun, Gifu 501-0695 (JP)

(30) Priority: 29.09.1999 JP 27743299

29.09.1999 JP 27712399

29.09.1999 JP 27711999

29.09.1999 JP 27712299

30.09.1999 JP 27986699

30.09.1999 JP 27840599

(74) Representative: Ablett, Graham Keith et al  
Ablett & Stebbing,  
Caparo House,  
101-103 Baker Street  
London W1M 1FD (GB)

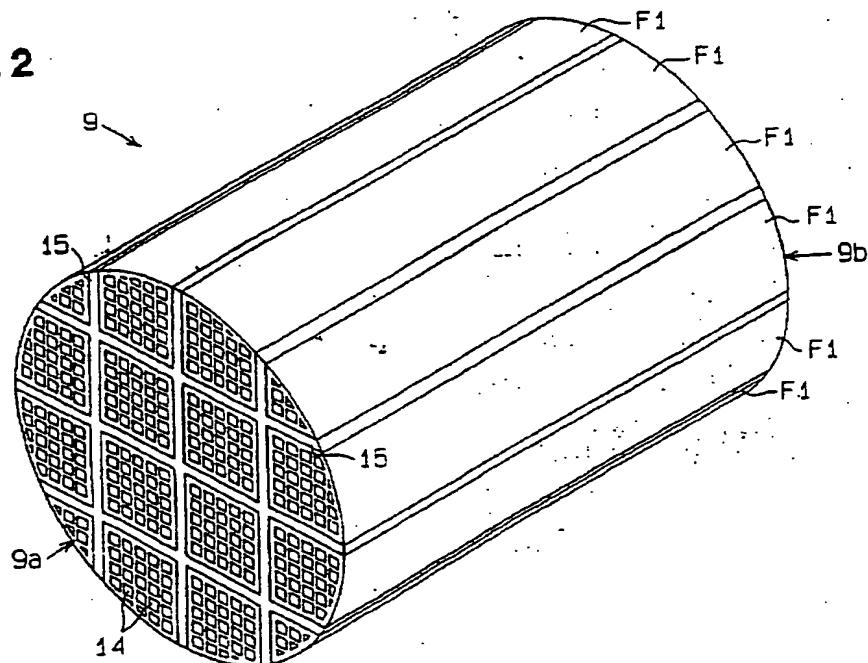
(71) Applicant: IBIDEN CO., LTD.  
Ogaki-shi Gifu-ken 503-8604 (JP)

(54) **HONEYCOMB FILTER AND CERAMIC FILTER ASSEMBLY**

(57) A ceramic filter assembly having improved exhaust gas processing efficiency. The ceramic filter assembly (9) is produced by adhering with a ceramic seal

layer (15) outer surfaces of a plurality of filters (F1), each of which is formed from a sintered porous ceramic body. The seal layer (15) has a thickness of 0.3mm to 3mm and a thermal conductance of 0.1W/mK to 10W/mK.

**Fig. 2**



**Description**

**TECHNICAL FIELD**

5 [0001] The present invention relates to a honeycomb filter and a ceramic filter assembly, and more particularly, to a honeycomb filter formed from a sintered ceramic body and an integral ceramic filter assembly produced by adhering a plurality of honeycomb filters to one another.

**BACKGROUND ART**

10 [0002] The number of automobiles has increased drastically this century. As a result, the amount of gas discharged from automobile engines has continued to increase proportionally. Various substances suspended in the exhaust gas that is emitted, especially from diesel engines, cause pollution and severely affect the environment. Further, recently reported research results have shown that the fine particles suspended in gas emissions (diesel particulates) may 15 cause allergies or decrease sperm counts. Thus, actions to eliminate the fine particles suspended in gas emissions must immediately be taken for the sake of mankind.

[0003] Due to this situation, many exhaust gas purification apparatuses have been proposed in the prior art. A typical exhaust gas purification apparatus includes a casing, which is located in an exhaust pipe connected to an exhaust manifold of an engine, and a filter, which is arranged in the casing and has fine pores. In addition to a metal or an alloy, 20 the filter may be formed from ceramic. A cordierite honeycomb filter is a known example of a ceramic filter. Recent filters are often formed from sintered porous silicon carbide body that is advantageous from the viewpoints of heat resistance and mechanical strength, has a high accumulating efficiency, is chemically stable, and has a small pressure loss.

25 [0004] The pressure loss refers to the difference between the pressure value taken upstream of the filter and the pressure value taken downstream of the filter. A main cause of power loss is the resistance the exhaust gas encounters when passing through a filter.

[0005] The honeycomb filter includes a plurality of cells extending along the axial direction of the honeycomb filter. When the exhaust gas passes through the filter, the walls of the cells trap fine particles. This removes fine particles 30 from the exhaust gas.

35 [0006] However, the honeycomb filter, which is made of a sintered porous silicon carbide body, is vulnerable to thermal impacts. Thus, larger filters are liable to crack. Accordingly, a technique for manufacturing a large ceramic filter assembly by integrating a plurality of small filters has recently been proposed to prevent breakage resulting from cracks.

[0007] A typical method for manufacturing a ceramic filter assembly will now be discussed. First, ceramic raw material is continuously extruded from a mold of an extruder to form an elongated square honeycomb molded product. After 40 the honeycomb filter is cut into pieces of equal length, the cut pieces are sintered to form a filter. Subsequent to the sintering process, a plurality of the filters are bundled and integrated by adhering the outer surfaces of the filters to each other with a ceramic seal layer having a thickness of 4 to 5mm. This completes the desired ceramic filter assembly.

[0008] A mat-like thermal insulative material, made of ceramic fiber or the like, is wrapped about the outer surface of the ceramic filter assembly. In this state, the assembly is arranged in a casing, which is located in an exhaust pipe. 45 [0009] However, in the prior art, there is a shortcoming in that the fine particles trapped in the ceramic filter assembly do not burn completely and some of the fine particles remain unburned. Accordingly, the efficiency for processing the exhaust gas is low.

[0010] Further, the honeycomb filter of the prior art has corners. Thus, there is a tendency of stress concentrating 50 on the corners of the outer surface and chipping the corners. Further, the seal layer may crack and break the ceramic filter assembly from the corners thereby damaging the entire ceramic filter assembly. Even if the assembly does not break, there is a shortcoming in that leakage of the exhaust gas may decrease the processing efficiency.

[0011] During usage of the filter assembly, a high temperature difference between the honeycomb filters may cause thermal stress to crack the honeycomb filters and break the entire assembly. Thus, the strength of each honeycomb filter must be increased to increase the strength of the honeycomb filter assembly.

55 [0012] The prior art ceramic filter assembly as a whole has a rectangular cross-section. Thus, the periphery of the assembly is cut so that the assembly as a whole has a generally round or oval cross-section.

[0013] However, the filter has a plurality of cells. Thus, if the periphery of the assembly is cut, the cell walls are exposed from the peripheral surface subsequent to the cutting. This forms lands and pits on the peripheral surface. Thus, even if the assembly is accommodated in the casing with the thermal insulative material attached to the peripheral surface of the assembly, gaps are formed in the longitudinal direction of the filters. Thus, exhaust gas tends to leak through the gaps. This lowers the processing efficiency of the exhaust gas.

[0014] With regard to diesel particulates trapped in the honeycomb filter, it has been confirmed that particulates having a small diameter have a high lung attaching rate and increase the risk to health. Thus, there is great need to

trap small particulates.

[0015] However, when the pore diameter and the porosity of the honeycomb filter are small, the honeycomb filter becomes too dense and hinders smooth passage of the exhaust gas, which, in turn, increases the pressure loss. This lowers the driving performance of the vehicle, lowers fuel efficiency, and deteriorates the driving performance.

5 [0016] On the other hand, if the pore diameter and porosity rate are increased, the above problems are solved. However, the number of openings in the honeycomb filter becomes too large. Thus, fine particles cannot be trapped. This decreases the trapping efficiency. Further, the mechanical strength of the honeycomb filter becomes low.

[0017] It is a first object to provide a ceramic filter assembly having an improved exhaust gas processing efficiency.

10 [0018] It is a second object of the present invention to provide a ceramic filter assembly having superior strength.

[0019] It is a third object of the present invention to provide a ceramic filter assembly that prevents fluid leakage from the peripheral surface.

[0020] It is a fourth object of the present invention to provide a honeycomb filter having small pressure loss and superior mechanical strength.

## 15 SUMMARY OF THE INVENTION

[0021] A first perspective of the present invention is an integral ceramic filter assembly produced by adhering with a ceramic seal layer outer surfaces of a plurality of filters, each of which is formed from a sintered porous ceramic body. The seal layer has a thickness of 0.3mm to 3mm and a thermal conductance of 0.1W/mK to 10W/mK.

20 [0022] A second perspective of the present invention is an integral ceramic filter assembly produced by adhering with a ceramic seal layer outer surfaces of a plurality of elongated polygonal honeycomb filters, each of which is formed from a sintered porous ceramic body. Round surfaces are defined on chamfered corners of the outer surface of each honeycomb filter, and the round surfaces have a curvature R of 0.3 to 2.5.

25 [0023] A third perspective of the present invention is an integral ceramic filter assembly produced by adhering with a ceramic seal layer outer surfaces of a plurality of filters, each of which is formed from a sintered porous ceramic body. The ceramic filter assembly includes a ceramic smoothing layer applied to the outer surface of the assembly, which as a whole has a generally circular cross-section or generally oval cross-section.

30 [0024] A fourth perspective of the present invention is an integral ceramic filter assembly produced by adhering with a ceramic seal layer outer surfaces of a plurality of elongated honeycomb filters, each of which is formed from a sintered porous ceramic body. A ratio L/S between a filter length L in a flow direction of a processed fluid and a filter cross-section S in a direction perpendicular to the flow direction is 0.06mm/mm<sup>2</sup> to 0.75mm/mm<sup>2</sup>.

35 [0025] A fifth perspective of the present invention is an integral honeycomb filter assembly produced by adhering with a ceramic seal layer outer surfaces of a plurality of honeycomb filters, each of which has a plurality of cells defined by a cell wall and which purifies fluid including particulates with the cell wall. A specific surface area of grains forming the cell wall is 0.1m<sup>2</sup>/g or more.

[0026] A sixth perspective of the present invention is an elongated honeycomb filter formed from a sintered porous ceramic body. A ratio L/S between a filter length L in a flow direction of a processed fluid and a filter cross-section S in a direction perpendicular to the flow direction is 0.06mm/mm<sup>2</sup> to 0.75mm/mm<sup>2</sup>.

40 [0027] A seventh perspective of the present invention is a honeycomb filter formed from a sintered porous ceramic body. An average pore diameter of the honeycomb filter is 5 to 15μ m, an average porosity is 30 to 50%, and the honeycomb filter has 20% or more of through pores.

[0028] An eighth perspective of the present invention is a honeycomb filter having a plurality of cells defined by a cell wall and purifying fluid including particulates with the cell wall. A specific surface area of grains forming the cell wall is 0.1m<sup>2</sup>/g or more.

## 45 BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

### [0029]

50 Fig. 1 is a schematic view showing an exhaust gas purification apparatus according to a first embodiment of the present invention.

Fig. 2 is a perspective view showing a ceramic filter assembly of the exhaust gas purification apparatus of Fig. 1.

55 Fig. 3 is a perspective view showing a honeycomb filter of the ceramic filter assembly of Fig. 2.

Fig. 4 is an enlarged cross-sectional view showing the main portion of the exhaust gas purification apparatus of Fig. 1.

EP 1 142 619 A1

Fig. 5 is an enlarged cross-sectional view showing the main portion of the ceramic filter assembly of Fig. 2.

Fig. 6 is an enlarged cross-sectional view showing the main portion of a ceramic filter assembly of a first modified example.

5 Fig. 7 is a perspective view showing a honeycomb filter according to a second embodiment of the present invention.

Fig. 8 is an enlarged cross-sectional view showing the main portion of a ceramic filter assembly.

10 Fig. 9 is an enlarged cross-sectional view showing the main portion of a ceramic filter assembly according to a first modified example.

Fig. 10 is a perspective view showing the honeycomb filter according to the first modified example.

15 Fig. 11 is a perspective view showing a honeycomb filter according to a second modified example.

Fig. 12 is a perspective view showing a honeycomb filter according to a third modified example.

20 Fig. 13 is a side view showing a ceramic filter assembly according to a third embodiment of the present invention.

25 Figs. 14(a) to 14(c) are schematic perspective views illustrating a manufacturing process of the ceramic filter assembly of Fig. 13.

Fig. 15 is a side view showing a ceramic filter assembly according to a modified example.

30 Fig. 16 is a perspective view of a ceramic filter assembly according to a fourth embodiment of the present invention.

Fig. 17 is a perspective view showing a filter of the ceramic filter assembly 3 of Fig. 16.

35 Fig. 18(a) is a schematic cross-sectional view showing the filter of Fig. 17, and Fig. 18(b) is a schematic side view showing the filter of Fig. 17.

Fig. 19 is a perspective view showing a honeycomb filter provided with a honeycomb structure according to fifth and sixth embodiments of the present invention.

40 Fig. 20 is a cross-sectional view showing the filter 59 of Fig. 19 taken along line 20-20.

Fig. 21 is an enlarged cross-sectional view showing the main portion of an exhaust gas purification apparatus.

45 Fig. 22 is a perspective view showing a ceramic filter assembly.

#### BEST MODE FOR CARRYING OUT THE INVENTION

[0030] A diesel engine exhaust gas purification apparatus 1 according to a first embodiment of the present invention will now be described with reference to Figs. 1 to 5.

45 [0031] Referring to Fig. 1, the exhaust gas purification apparatus 1 is an apparatus for purifying the exhaust gas emitted from a diesel engine 2, which serves an internal combustion engine. The diesel engine 2 has a plurality of cylinders (not shown). Each cylinder is connected to a branch 4 of an exhaust manifold 3, which is made of a metal material. Each branch 4 is connected to a single manifold body 5. Accordingly, the exhaust gas emitted from each 50 cylinder is concentrated at one location.

[0032] A first exhaust pipe 6 and a second exhaust pipe 7, which are made of a metal material, are arranged downstream to the exhaust manifold 3. The upstream end of the first exhaust pipe 6 is connected to the manifold body 5. A tubular casing 8 made of a metal material is arranged between the first exhaust pipe 6 and the second exhaust pipe 7. The upstream end of the casing 8 is connected to the downstream end of the first exhaust pipe 6, and the downstream 55 end of the casing 8 is connected to the upstream end of the second exhaust pipe 7. With this structure, it may be considered that the casing 8 is arranged in the exhaust pipes 6, 7. The first exhaust pipe 6, the casing 8, and the second exhaust pipe 7 are communicated with each other so that exhaust gas flows therethrough.

[0033] As shown in Fig. 1, the middle portion of the casing 8 has a diameter larger than that of the exhaust pipes 6,

7. Accordingly, the interior of the casing 8 is larger than that of the exhaust pipes 6, 7. A ceramic filter assembly 9 is accommodated in the casing 8.

[0034] A thermal insulative material 10 is arranged between the outer surface of the assembly 9 and the inner surface of the casing 8. The thermal insulative material 10 is a mat-like material including ceramic fibers and has a thickness of several millimeters to several tens of millimeters. It is preferred that the heat insulative material 10 be thermally expansive. Thermally expansive refers to the release of thermal stress through an elastic structure. This is to minimize energy loss during reproduction by preventing heat from being released from the outermost portion of the assembly 9. Further, the expansion of ceramic fibers using the heat produced during reproduction prevents displacement of the ceramic filter assembly 9, which would result from the pressure of the exhaust gas or vibrations produced by the moving vehicle.

[0035] The ceramic filter assembly 9 eliminates diesel particulates and it thus normally referred to as a diesel particulate filter (DPF). As shown in Fig. 2 and Fig. 4, the assembly 9 is formed by bundling and integrating a plurality of filters F. Elongated square filters F1 are arranged at the central portion of the assembly 9, and the outer dimension of the elongated square filter F1 is 33mm×33mm×167mm (refer to Fig. 3). Filters F1 that have forms differing from the elongated square filters F1 are arranged about the elongated square filters F1. This forms the ceramic filter body 9, which as a whole, is cylindrical (diameter being about 135mm).

[0036] These filters F1 are made of a sintered porous silicon carbide, which is one type of sintered ceramic. The reason for employing sintered porous silicon carbide is because it is advantageous especially in that it has superior heat resistance and heat conductance. In addition to sintered porous silicon carbide, the sintered material may be silicon nitride, sialon, alumina, cordierite, or mullite.

[0037] As shown in Fig. 3 and the other drawings, the filters F1 have a honeycomb structure. The reason for employing the honeycomb structure is in that the pressure loss is small when the trapped amount of fine particles increases. Each filter f1 has a plurality of through holes 12, which have generally square cross-sections and are arranged regularly extending in the axial direction. The through holes 12 are partitioned from each other by thin cell walls 13. The outer surface of the cell wall 13 carries an oxide catalyst formed from a platinum group element (such as Pt) or other metal elements and their oxides. The opening of each through hole 12 on one of the end surfaces 9a, 9b is sealed by a sealing body 14 (sintered porous silicon carbide body). Accordingly, the end surfaces 9a, 9b have a chessboard appearance. Thus, the filters F1 have a plurality of cells having square cross-sections. The cell density is about 200/inch, the thickness of the cell wall 13 is about 0.3mm, and the cell pitch is about 1.8mm. Among the plurality of cells, about half are opened to the upstream end surface 9a, and the others are opened at the downstream end surface 9b.

[0038] The average porous diameter of the filter F1 is about 1 μm-50μm, and more particularly, 5μm-20μm. If the average pore diameter is less than 1μm, the deposited fine particles tend to clog the filter F1. If the average pore diameter exceeds 50μm, fine particles would not be trapped and would decrease the trapping efficiency.

[0039] It is preferred that the porosity rate be 30% to 70%, and more particularly, 40% to 60%. If the porosity rate is lower than 30%, the filter F1 becomes too fine and may hinder the circulation of exhaust gas therein. If the porosity rate exceeds 70%, the amount of gaps in the filters F1 becomes too large. This may decrease the strength of the filters f1 and decrease the fine particle trapping efficiency.

[0040] When selecting the sintered porous silicon carbide, it is preferred that the heat conductance of the filter F1 be 20W/mK to 80W/mK, and more particularly, 30W/mK to 70W/mK.

[0041] Referring to Figs. 4 and 5, the outer surfaces of a total of 16 filters F are adhered to one another by means of a ceramic seal layer 15.

[0042] The ceramic seal layer 15 will now be described in detail.

[0043] It is preferred that the heat conductance of the seal layer 15 be 0.1W/mK-10W/mK, and more particularly be 0.2W/mK-2W/mK.

[0044] If the heat conductance is less than 0.1W/mK, the heat conductance of the seal layer 15 cannot be sufficiently improved. Thus, the seal layer 15 continues to be a large resistance and hinders heat conduction between filters F1. On the other hand, if the heat conductance exceeds 10W/mK, properties such as adhesion and heat resistance may be degraded and cause manufacturing to be difficult.

[0045] It is required that the thickness t1 of the seal layer 15 be 0.3mm-3mm. Further, it is preferred that the thickness be 0.5mm-2mm.

[0046] If the thickness t1 exceeds 3mm, the seal layer 15 continues to be a large seal layer 15 even if the heat conductance is high and the heat conductance between the filters F1 is hindered. In addition, the ratio of the assembly 9 occupied by the filters F1 would relatively decrease and lower the filtration capacity. On the other hand, if the thickness t1 of the seal layer 15 is less than 0.3mm, the seal layer 15 would not become a large resistance. However, the force

55 adhering the filters F1 to each other may become too low and cause the assembly 9 to be vulnerable to breakage.

[0047] The seal layer 15 is formed from at least an inorganic fiber, an inorganic binder, an organic binder, and inorganic particles. Further, it is preferred that the seal layer 15 be an elastic material formed by binding inorganic fibers and inorganic particles, which three-dimensionally intersect one another, with an inorganic binder and an organic binder.

EP 1 142 619 A1

- [0048] At least one type of ceramic fiber selected from silica-alumina fiber, mullite fiber, alumina fiber, and silica fiber are selected as the inorganic fiber included in the seal layer 15. Among these fibers, it is most preferred that silica-alumina ceramic fiber be selected. Silica-alumina ceramic fiber has superior elasticity and serves to absorb thermal stress.
- 5 [0049] In this case, the content of the silica-alumina ceramic fiber in the seal layer 15 is 10wt%-70wt%, preferably 10wt%-40wt%, and more preferably 20wt%-30wt%. If the content is less than 10wt%, the thermal conductivity decreases and the elasticity decreases. If the content exceeds 70%, the thermal conductivity and elasticity decrease.
- [0050] The shot content of the silica-alumina ceramic fiber is 1wt%-10wt%, preferably 1wt%-5wt%, and more preferably 1wt%-3wt%. If the shot content is less than 1wt%, manufacture is difficult, and if the shot content is 50wt%, the outer surface of the filter F1 may be damaged.
- 10 [0051] The fiber length of silica-alumina ceramic fiber is 1mm-10mm, preferably 1mm-50mm, and more preferably 1mm-20mm. If the fiber length is 1mm or less, there is a disadvantage in that an elastic structure cannot be formed. If the fiber length exceeds 100mm, there is a disadvantage in that the fiber may produce balls of fibers and decrease the dispersion of inorganic fine particles. Further, if the fiber length exceeds 100mm, it becomes difficult to make the seal layer thinner than 3mm and to improve the heat conductance between the filters F1.
- 15 [0052] It is preferred that the inorganic binder included in the seal layer 15 be a colloidal sol selected from at least one of silica sol and alumina sol. It is especially preferred that silica sol be selected. This is because silica sol is optimal for use as an adhesive agent under high temperatures since it is easily obtained easily sintered to  $\text{SiO}_2$ . In addition, silica sol has a superior insulative characteristic.
- 20 [0053] In this case, the content of silica sol in the seal layer 15 as a solid is 1wt%-30wt%, preferably 1wt%-15wt% and more preferably 5wt%-9wt%. If the content is less than 1wt%, the adhesive strength decreases. On the other hand, if the content exceeds 30wt%, the thermal conductivity decreases.
- [0054] It is preferred that the organic binder included in the seal layer 15 be a hydrophilic organic high polymer and also be preferred that the organic binder be a polysaccharide selected from at least one of poly vinyl alcohol, methyl cellulose, ethyl cellulose, and carboxymethyl cellulose. It is especially preferred that carboxymethyl cellulose be selected. This is because the seal layer 15 has optimal fluidity due to carboxymethyl cellulose and thus has superior adhesion under normal temperatures.
- 25 [0055] In this case, the content of carboxymethyl cellulose as a solid is 0.1wt%-5.0wt%, preferably 0.2wt%-1.0wt%, and more preferably 0.4wt%-0.6wt%. If the content is less than 0.1wt%, sufficient inhibition of migration becomes difficult. Migration refers to a phenomenon in which the binder in the seal layer 15 moves as the solvent is removed as it dries when the seal layer 15 charged between the sealed bodies hardens. If the content exceeds 5.0wt%, high temperature burns and eliminates the organic binder and decreases the strength of the seal layer 15.
- 30 [0056] It is preferred that the inorganic particles included in the seal layer 15 be an inorganic powder or an elastic material employing a whisker that is selected from at least one of silicon carbide, silicon nitride, and boron nitride. Such carbide and nitrides have an extremely high thermal conductivity and, when included in the surface of a ceramic fiber or in the surface of inside a colloidal sol, contributes to increasing the thermal conductivity.
- [0057] Among the above carbide and nitrides, it is especially preferred that the silicon carbide powder be selected. This is because the thermal conductivity of silicon carbide is extremely high and easily adapts to ceramic fiber. In addition, in the first embodiment, the filter F1, which is the sealed body, is made of sintered porous silicon carbide.
- 35 [0058] Thus, it is preferred that the same type of silicon carbide powder be selected.
- 40 [0059] In this case, it is preferred that the content of the silicon carbide powder as a solid be 3wt%-80wt%, preferably 10wt%-60wt%, and more particularly, 20wt%-40wt%. If the content is 3wt% or less, the thermal conductivity of the seal layer 15 decreases and results in the seal layer 15 having a large heat resistance. If the content exceeds 80wt%, the adhesion strength decreases when the temperature is high.
- 45 [0060] The grain diameter is  $0.01\mu\text{m}$ - $100\mu\text{m}$ , preferably  $0.1\mu\text{m}$ - $15\mu\text{m}$ , and more preferably  $0.1\mu\text{m}$ - $10\mu\text{m}$ . If the grain diameter exceeds  $100\mu\text{m}$ , the adhesion and thermal conductivity decrease. If the grain diameter is less than  $0.01\mu\text{m}$ , the cost of the seal material 15 increases.
- 50 [0061] The procedure for manufacturing the ceramic filter assembly 9 will now be discussed.
- [0062] First, a ceramic raw material slurry used during an extrusion process, a sealing paste used during an end surface sealing process, and a seal layer formation paste used during a filter adhesion process are prepared.
- 55 [0063] Next, the ceramic raw material slurry is put into an extruder and continuously extruded from a mold. Afterward, the extruded honeycomb molded product is cut into equivalent lengths to obtain elongated square honeycomb molded product pieces. Further, a predetermined amount of sealing paste is charged into one of the openings of each cell in

- the cut pieces such that both end surfaces of each cut piece is sealed.
- [0064] Then, main sintering is performed by setting predetermined conditions, such as the temperature and time, to completely sinter the honeycomb molded pieces and the sealing bodies 14. All of the sintered porous silicon carbide filters F1 obtained in this manner are still square pole-shaped.
- 5 [0065] The sintering temperature is set to 2,100°C to 2,300°C in the present embodiment to obtain the average pore diameter of 6μm-15μm and a porosity of 35% to 50%. Further, the sintering time is set to 0.1 hours to 5 hours. Further, the interior of a furnace has an inert atmosphere during sintering, and the pressure in that atmosphere is the normal pressure.
- 10 [0066] Then, after forming a ceramic bedding layer to the outer surface of the filters F1 as required, the seal layer formation paste is applied thereto. The outer surfaces of sixteen of such filters F1 are adhered to each other and thus integrated.
- 15 [0067] In the following outer form cutting process, the assembly 9, which has been obtained through the filter adherence process and has a square cross-section, is ground to form the outer shape of the assembly 9 by eliminating unnecessary sections from the peripheral portion of the assembly 9 and form the ceramic filter assembly 9, which cross-section is round.
- 20 [0068] The fine particle trapping performed by the ceramic filter assembly 9 will now be described briefly.
- [0069] The ceramic filter assembly 9 accommodated in the casing 9a is supplied with exhaust gas. The exhaust gas supplied via the first exhaust pipe 6 first enters the cells that are opened at the upstream end surface 9a. The exhaust gas than passes through the cell wall 13 and enters the adjacent cells, or the cells that are opened at the downstream end surface 25 9b. From the openings of these cells, the exhaust gas flows out of the downstream end surfaces 9b of the filters F1. However, the fine particles included in the exhaust gas do not pass through the cell walls 13 and are trapped by the cell walls 13. As a result, the purified gas is discharged from the downstream end surface 9b of the filters F1. The purified exhaust gas then passes through the second exhaust pipe 7 to be ultimately discharged into the atmosphere. The trapped fine particles are ignited and burned by the catalytic effect that occurs when the internal temperature of the assembly 9 reaches a predetermined temperature.

(Example 1-1)

[0070]

- 30 (1) 51.5wt% of α silicon carbide powder having an average grain diameter of 10μm and 22wt% of α silicon carbide powder having an average grain diameter of 0.5μm were wet-mixed. Then, 6.5wt% of the organic binder (methyl cellulose) and 20wt% of water were added to the obtained mixture and kneaded. Next, a small amount of the plastic agent and the lubricative agent were added to the kneaded mixture, further kneaded, and extruded to obtain the honeycomb molded product. More specifically, the α silicon carbide powder having an average particle diameter of about 10μm was produced by Yakushima Denkou Kabushiki Kaisha under the product name of C-1000F, and the α silicon carbide powder having an average particle diameter of about 0.5μm was produced by Yakushima Denkou Kabushiki Kaisha under the product name of GC-15.
- 40 (2) Then, after drying the molded product with a microwave dryer, the through holes 12 of the molded product was sealed by the sealing paste made of sintered porous silicon carbide. Afterward, the sealing paste was dried again with the dryer. After the end surface sealing process, the dried body was degreased at 400°C and then sintered for about three hours at 2,200°C in an argon atmosphere at the normal pressure. This obtained the porous, honeycomb, silicon carbide filters F1.
- 45 (3) 23.3wt% of a ceramic fiber (alumina silicate ceramic fiber, shot content 3%, fiber length 0.1mm-100mm), 30.2wt% of silicon carbide having an average grain diameter of 0.3μm, 7wt% of silica sol (the converted amount of SiO<sub>2</sub> of the sol being 30%) serving as the inorganic binder, 0.5wt% of carboxymethyl cellulose serving as the organic binder, and 39wt% of water were mixed and kneaded. The kneaded material was adjusted to an appropriate viscosity to prepare the paste used to form the seal layer 15.
- 50 (4) Then, the seal layer forming paste was uniformly applied to the outer surface of the filters F1. Further, in a state in which the outer surfaces of the filters F1 were adhered to one another, the filters F1 were dried and hardened under the condition of 50°C to 100°C × 1 hour. As a result, the seal layer 15 adhered the filters F1 to one another. The thickness t1 of the seal layer 15 was set at 0.5mm. The heat conductivity of the seal layer 15 was 0.3W/mK.
- 55 (5) Next, the peripheral portion was cut to shape the peripheral portion and complete the ceramic filter assembly 9, which has a round cross-section.

EP 1 142 619 A1

- [0071] Then, the thermal insulative material 10 is wound about the assembly 9 obtained in the above manner. In this state, the assembly 9 is accommodated in the casing 8 and actually supplied with exhaust gas. After a predetermined time elapses, the assembly 9 is removed and cut at a plurality of locations. The cut surfaces were observed with the naked eye.
- 5 [0072] Consequently, residuals of the fine particles were not confirmed at the peripheral portion of the assembly 9 (especially, the peripheral portion near the downstream end surface) where there is a tendency for unburned particles to remain. The fine particles were of course completely burned at other portions. It is considered that such results are obtained because the usage of the seal layer 15 prevents the conductance of heat between the filters F1 from being decreased and the temperature sufficiently increases at the peripheral portion of the assembly 9. Accordingly, in example 1-1, it is apparent that exhaust gas was efficiently processed.
- 10

(Examples 1-2, 1-3)

- 15 [0073] In example 1-2, the ceramic filter assembly 9 was prepared by setting the thickness t1 of the seal layer 15 at 1.0mm. The other conditions were basically set in accordance with example 1-1. In example 3, the ceramic filter assembly 9 was formed by setting the thickness t1 of the seal layer 15 at 2.5mm. The other conditions were basically set in accordance with example 1-1.
- [0074] Then, the obtained two types of assemblies 9 were used for a certain period, and the cut surfaces were observed with the naked eye. The same desirable results as example 1-1 were obtained. Thus, it is apparent that the exhaust gas was efficiently processed in examples 1-2 and 1-3.
- 20

(Example 1-4)

- 25 [0075] In example 1-4, the employed seal layer forming paste was prepared by mixing and kneading 25wt% of a ceramic fiber (mullite fiber, shot content rate 5wt%, fiber length 0.1mm-100mm), 30wt% of silicon nitride powder having an average grain diameter of 1.0 $\mu$ m, 7wt% of alumina sol (the conversion amount of alumina sol being 20%) serving as an inorganic binder, 0.5wt% of poly vinyl alcohol serving as an organic binder, and 37.5wt% of alcohol. The other portions were formed in accordance with example 1-1 to complete the ceramic filter assembly 9. The thickness t1 of the seal layer 15 was set at 1.0mm. The thermal conductivity of the seal layer 15 was 0.2W/mK.
- 30 [0076] Then, the obtained assembly 9 was used for a certain period, and the cut surfaces were observed with the naked eye. The same desirable results as example 1 were obtained. Thus, it is apparent that the exhaust gas was efficiently processed in example 4.

(Example 1-5)

- 35 [0077] In example 1-5, the employed seal layer forming paste was prepared by mixing and kneading 23wt% of a ceramic fiber (alumina fiber, shot content rate 4wt%, fiber length 0.1mm-100mm), 35wt% of boron nitride powder having an average grain diameter of 1 $\mu$ m, 8wt% of alumina sol (the conversion amount of alumina sol being 20%) serving as an inorganic binder, 0.5wt% of ethyl cellulose serving as an organic binder, and 35.5wt% of acetone. The other portions were formed in accordance with example 1 to complete the ceramic filter assembly 9. The thickness t1 of the seal layer 15 was set at 1.0mm. The thermal conductivity of the seal layer 15 was 2W/mK.
- [0078] Then, the obtained assembly 9 was used for a certain period, and the cut surfaces were observed with the naked eye. The same desirable results as example 1 were obtained. Thus, it is apparent that the exhaust gas was efficiently processed in example 5.
- 45 [0079] The ceramic filter assembly 9 of the first embodiment has the following advantages:

- 50 (1) In each example, the thickness t1 of the seal layer 15 is set in the preferable range of 0.3mm-3mm, and the thermal conductivity of the seal layer 15 is set in the preferable range of 0.1W/mK-10W/mK. This improves the thermal conductivity of the seal layer and prevents the thermal conductivity between the filters F1 from being decreased. Accordingly, heat is uniformly and quickly conducted to the entire assembly 9. This prevents a temperature difference from being produced in the assembly 9. Accordingly, the thermal uniformity of the assembly 9 is increased and the occurrence of locally unburned particles is avoided. The exhaust gas purification apparatus 1, which uses the assembly 9, has superior exhaust gas processing efficiency.
- 55 Further, if the thickness t1 and the thermal conductivity is within the above range, basic properties, such as adhesiveness and heat resistance remain the same. This avoids the manufacturing of the seal layer 15 from becoming difficult. Further, since the seal layer 15 serves to adhere the filters F1 to one another, breakage of the assembly 9 is avoided. In other words, the assembly 9 is relatively easy to manufacture and has superior durability.

EP 1 142 619 A1

(2) The seal layer 15 in each example contains as a solid 10wt%-70wt% of ceramic fibers. This enables the seal layer 15 to have high thermal conductivity and elasticity. Thus, the thermal conductivity between filters F1 is improved, and the thermal conductivity of the assembly 9 is further increased.

5 (3) The seal layer 15 in each example contains ceramic fibers, the lengths of which are 100mm or shorter. Accordingly, the thickness t1 of the seal layer 15 may be set to 3mm or less without any difficulties. This increases the heat conductivity between the filters F1, and thus contributes to the thermal uniformity of the assembly 9.

10 (4) The seal layer 15 in each example contains as a solid 3wt%-80wt% of inorganic particles. Thus, the seal layer 15 has high thermal conductivity. This increases the heat conductivity between the filters F1 and contributes to the thermal uniformity of the assembly 9.

15 (5) The seal layer 15 in the above examples are formed from at least an inorganic fiber, an inorganic binder, an organic binder, and inorganic particles. Further, the seal layer 15 is made of an elastic material formed by joining three-dimensionally intersecting the inorganic fibers with the inorganic particles with an inorganic binder and an organic binder.

[0080] Such material has the advantages described below. Sufficient adhesion strength is obtained in a low temperature range and a high temperature range. Further, the material is elastic. Thus, when thermal stress is applied to the assembly 9, the release of the thermal stress is ensured.

20 [0081] The first embodiment of the present invention may be modified as described below.

(a) The number of the filters F1 is not limited to 16 and may be any number. In this case, filters F1 having different dimensions and shapes may be combined.

25 (b) With reference to Fig. 6, in a ceramic filter assembly 21 of a further embodiment, the filters F1 are offset from one another in a direction perpendicular to the filter axial direction, and the filters F1 are adhered by the seal layer 15. In this case, the filters F1 resists displacement when being accommodated in the casing 8. This improves the breakage strength of the assembly 21. In the ceramic filter assembly 21 of Fig. 6, the seal layer 15 does not include cross-like portions. It is considered that this contributes to improvement of the breakage strength. Further, since the thermal conductivity in the radial direction of the assembly 21 is further improved, the thermal uniformity of the assembly 21 is further enhanced.

30 (c) Instead of the honeycomb filters F1, the filters may have a three-dimensional mesh structure, a foam-like structure, a noodle-like structure, or a fiber-like structure.

35 (d) Prior to the outer form cutting process, the form of the filter F1 is not limited to the elongated square shape and may have a triangular pole-like shape or a hexagonal pole-like shape. Further, the assembly 9 does not necessarily have to be formed to have a round cross-section during the outer form cutting process and may be formed to have a, for example, oval cross-section.

40 [0082] Fig. 7 is a perspective view showing a honeycomb filter F10 of a ceramic filter assembly in a second embodiment of the present invention. Fig. 8 is an enlarged cross-sectional view showing the main portion of the exhaust gas purification apparatus. The corners on the outer surface of the honeycomb filter F10 are curved to define round surfaces 18. It is required that the curvature of the round surfaces 18 be R=0.3 to 2.5. It is further preferred that the curvature be R=0.7 to 2.5, and particularly preferred that the curvature be R=1.0 to 2.0.

45 [0083] When the curvature R is 0.3 or less, the corners are still angulated. Thus, the concentration of stress to the corners cannot be sufficiently avoided and the corners may chip or crack. On the other hand, if the curvature R exceeds 2.5, the cross-sectional area of the honeycomb filter F1 decreases. This reduces the effective number of cells and decreases the filtering capability of the assembly 29.

50 [0084] The ceramic filter assembly of the second embodiment is manufactured by chamfering each corner of an elongated square honeycomb molded product piece and forming the round surfaces 18 with the predetermined curvature R.

55 (Example 2-1)

[0085] In example 2-1, the ceramic filter assembly 29 was manufactured by drying molded products with a microwave dryer, cutting off each corner to perform chamfering, and forming the round surfaces 18 of R=1.5. The other steps are

in accordance with example 1-1.

[0086] An assembly 29 obtained in the above manner was actually supplied with exhaust gas. After a predetermined time, the assembly 29 was removed and observed with the naked eye.

5 [0087] The result revealed that there were no cracks originating from the corners in the seal layer 15. Further, there was no chipping of the corners. Accordingly, it has become apparent that the assembly 29 of the example 2-1 is extremely superior in strength.

(Examples 2-2, 2-3)

10 [0088] In example 2, the ceramic filter assembly 9 was manufactured by setting the curvature of the round surfaces 18 at  $R=0.4$  and forming the other portions basically in the same manner as in example 2-1. In example 2-3, the ceramic filter assembly 29 was manufactured by setting the curvature of the round surfaces 18 at  $R=2.4$  and forming the other portions basically in the same manner as in example 2-1.

15 [0089] Then, the obtained two types of the assembly 29 were used for a certain time period in the same manner as example 2-1 and observed with the naked eye. A preferable result similar to that of example 2-1 was obtained. In other words, it has become apparent that the assemblies 29 of the examples 2-2, 2-3 are superior in strength.

(Example 2-4)

20 [0090] In example 2-4, the ceramic filter assembly 29 was manufactured by using a seal layer forming paste in the same manner as in example 1-4 and forming the other portions in the same manner as in example 2-1. The thickness of the seal layer was set at 1.0mm, and the curvature of the round surface 18 of each corner was set at  $R=1.5$ .

25 [0091] Then, the obtained assembly 29 was used for a certain time period in the same manner as example 2-1 and observed with the naked eye. A preferable result similar to that of example 2-1 was obtained. In other words, it has become apparent that the assembly 29 of example 2-4 is superior in strength.

(Example 2-5)

30 [0092] In example 2-5, the ceramic filter assembly 29 was manufactured by using a seal layer forming paste in the same manner as in example 1-5 and forming the other portions in the same manner as in example 2-1. The thickness of the seal layer was set at 1.0mm, and the curvature of the round surface 18 of each corner was set at  $R=1.5$ .

35 [0093] Then, the obtained assembly 29 was used for a certain time period in the same manner as example 2-1 and observed with the naked eye. A preferable result similar to that of example 2-1 was obtained..

35 (Comparative Example)

[0094] In the comparative example, the ceramic filter assembly 9 was manufactured without chamfering the corners and forming the other portions in the same manner as in example 2-1. Thus, the honeycomb filters F1 of the assembly 29 have angulated corners.

40 [0095] Then, the obtained assembly 29 was used for a certain time period in the same manner as example 2-1 and observed with the naked eye. Cracks and chipping caused by stress concentration were discovered at multiple locations. Accordingly, the assembly 29 was inferior in strength.

[0096] The ceramic filter assembly of the second embodiment has the advantages discussed below.

45 (1) The corners on the outer surface of the honeycomb filter F1 are round surfaces 18 having a curvature in an optimal range. This avoids stress concentration at the corners. Accordingly, the chipping of the corners of the honeycomb filter F1, the cracking of the seal layer 15 from the corners is prevented, and the ceramic filter assembly 29 resists breakage. This increases the strength of the assembly 29 and improves the strength and filtering capability of the exhaust gas purification apparatus 1, which employs the assembly 29.

50 (2) The assembly 29 employs the honeycomb filter 1, which is made of honeycomb sintered porous silicon carbide. As a result, the obtained assembly 29 has a higher filtering capability, less pressure loss, and superior heat resistance and heat conductance characteristics.

55 [0097] The second embodiment may be modified as described below.

[0098] With reference to Fig. 9, the present invention may be embodied in a ceramic filter assembly 221 by offsetting

the filters F1 from one another in a direction perpendicular to the filter axial direction.

[0099] Instead of forming the round surfaces 18 by chamfering the corners, the round surfaces may be formed si-

multaneously when molding the honeycomb molded product with a mold.

[0100] The honeycomb filter F1 is not required to be shaped into a rectangular pole, which has a square cross-section, prior to the outer form cutting process. For example, as shown in Fig. 10, a honeycomb filter F20 may be formed into a rectangular pole having a rectangular cross-section. Further, a honeycomb filter F30 may be triangular as shown in Fig. 11, and a honeycomb filter F40 may be hexagonal as shown in Fig. 12.

5 [0101] Fig. 13 is a schematic cross-sectional view showing a ceramic filter 39 according to a third embodiment of the present invention.

[0102] Referring to Fig. 13 and Fig. 14(b), the ceramic filter assembly 39 of the third embodiment has an outer surface 39c to which a ceramic smoothing layer 16 is applied. The smoothing layer 16 is made of a ceramic material that includes at least ceramic fibers and a binder. It is preferred that the ceramic material includes inorganic particles, such as silicon carbide, silicon nitride, and boron nitride. It is preferred that an inorganic binder, such as silica sol or alumina sol, or an organic binder, such as a polysaccharide, be used as the binder. It is preferred that the ceramic material be formed by binding three-dimensionally intersecting ceramic fibers and inorganic particles with a binder. It is preferred that the smoothing layer 16 be formed from the same type of material as the seal layer 15, and especially preferred that the smoothing layer 16 be made of exactly the same material as the seal layer 15.

[0103] It is preferred that the thickness of the smoothing layer 16 be 0.1mm to 10mm, further preferred that the thickness be 0.3mm to 2mm, and optimal that the thickness be 0.5mm to 1mm. If the smoothing layer 16 is too thin, pits 17 that are formed in the outer surface 9c of the ceramic filter assembly 9 cannot be completely filled. Thus, gaps tend to remain in such locations. On the other hand, if the smoothing layer 16 is thickened, the formation of the layer may become difficult, and the diameter of the entire assembly 9 may be enlarged.

[0104] It is preferred that the seal layer 15 be formed thinner than the smoothing layer 16, and more particularly, be formed in the range of 0.3mm to 3mm. When the seal layer 15 is thinner than the smoothing layer, the filtering capacity and the thermal conductance are prevented from being decreased beforehand.

[0105] The procedure for manufacturing the ceramic filter assembly 39 will now be described with reference to Fig. 14.

[0106] First, a ceramic raw material slurry used during an extrusion process, a sealing paste used during an end surface sealing process, a seal layer formation paste used during a filter adhesion process, and a smoothing layer formation paste are prepared. When using the seal layer formation paste to form the smoothing layer, the smoothing layer formation paste does not have to be prepared.

[0107] The ceramic raw material slurry is prepared by combining and kneading predetermined amounts of an organic binder and water with silicon carbide particles. The sealing paste is prepared by combining and kneading an inorganic binder, a lubricative agent, a plastic agent, and water with silicon carbide powder. The seal layer formation paste (smoothing layer formation paste) is prepared by combining and kneading predetermined amounts of an inorganic fiber, an inorganic binder, an organic binder, inorganic particles, and water.

[0108] Next, the ceramic raw material slurry is put into an extruder and continuously extruded from a mold. Afterward, the extruded honeycomb molded product is cut into equivalent lengths to obtain elongated square honeycomb molded product pieces. Further, a predetermined amount of the sealing paste is charged into one of the openings of each cell in the cut pieces to seal both end surfaces of each cut piece.

[0109] Then, main sintering is performed by setting predetermined conditions, such as the temperature and time, to completely sinter the honeycomb molded pieces and the sealing bodies 14. All of the sintered porous silicon carbide filters F1 obtained in this manner are still square pole-shaped.

[0110] The sintering temperature is set to 2,100° C to 2,300° C in the present embodiment to obtain the average pore diameter of 6μm to 15 μm and a porosity of 35% to 50%. Further, the sintering time is set to 0.1 hours to 5 hours. Further, the interior of a furnace has an inert atmosphere during sintering, and the pressure in that atmosphere is the normal pressure.

[0111] Then, after forming a ceramic bedding layer to the outer surface of the filters F1 as required, the seal layer formation paste is applied thereto. The outer surfaces of sixteen of such filters F1 are adhered to each other and thus integrated. At this point, the ceramic filter assembly 39A as a whole has a square cross-section, as shown in Fig. 14(a).

[0112] In the following outer form cutting process, the assembly 39A, which has been obtained through the filter adherence process and has a square cross-section, is ground to form the outer shape of the assembly 9 by eliminating unnecessary sections from the peripheral portion of the assembly 39A.

[0113] As a result, the ceramic filter assembly 39 having around cross-section is obtained, as shown in Fig. 14(b). Cell walls 13 are partially exposed from the surface formed during the outer form cutting. Thus, pits 17 are formed in the outer surface 39c. The pits 17 are about 0.5mm to 1mm and are defined by ridges and valleys extending in the axial direction of the assembly 39 (i.e., the longitudinal direction of the filters F1).

[0114] In the following smoothing layer forming process, the seal layer formation paste is used as the smoothing layer formation paste and uniformly applied to the outer surface 9c of the assembly 39. This completes the ceramic filter assembly 39 shown in Fig. 14(c).

(Example 3-1)

## [0115]

5 (1) 51.5wt% of  $\alpha$  silicon carbide powder and 22wt% of  $\beta$  silicon carbide powder were wet-mixed. Then, 6.5wt% of the organic binder (methyl cellulose) and 20wt% of water were added to the obtained mixture and kneaded. Next, a small amount of the plastic agent and the lubricative agent were added to the kneaded mixture, further kneaded, and extruded to obtain the honeycomb molded product.

10 (2) Then, after drying the molded product with a microwave dryer, the through holes 12 of the molded product were sealed by the sealing paste made of sintered porous silicon carbide. Afterward, the sealing paste was dried again with the dryer. After the end surface sealing process, the dried body was degreased at 400°C and then sintered for about three hours at 2,200°C in an argon atmosphere at normal pressure. This obtained the porous, honeycomb, silicon carbide filters F1.

15 (3) 23.3wt% of a ceramic fiber (alumina silicate ceramic fiber, shot content 3%, fiber length 0.1mm-100mm), 30.2wt% of silicon carbide having an average grain diameter of 0.3 $\mu$ m, 7wt% of silica sol (the converted amount of SiO<sub>2</sub> of the sol being 30%) serving as the inorganic binder, 0.5wt% of carboxymethyl cellulose serving as the organic binder, and 39wt% of water were mixed and kneaded. The kneaded material was adjusted to an appropriate viscosity to prepare the paste used to form the seal layer 15 and the smoothing layer 16.

20 (4) Then, the seal layer forming paste was uniformly applied to the outer surface of the filters F1. Further, in a state in which the outer surfaces of the filters F1 were adhered to one another, the filters F1 were dried and hardened under the condition of 50°C to 100°C × 1 hour. As a result, the seal layer 15 adhered the filters F1 to one another. The thickness t1 of the seal layer 15 was set at 1.0mm.

25 (5) Next, the peripheral portion was cut to shape the peripheral portion and complete the ceramic filter assembly 39, which has a round cross-section. Then, the seal and smoothing paste was uniformly applied to the exposed outer surface 39c. The smoothing layer 16 having a thickness of 0.6mm was dried and hardened under the condition of 50°C to 100°C × 1 hour to complete the assembly 39.

30 [0116] The assembly 39 obtained in the above manner was observed with the naked eye. The pits 17 in the outer surface 39c were substantially completely filled by the smoothing layer 16, and the outer surface 39c was smooth. Further, there were no cracks in the boundary portions of the smoothing layer 16 and the seal layer 15. Accordingly, this indicates that the levels of adhesion and seal were high at the boundary portions.

35 [0117] No gaps were formed in the outer surface 9c of the assembly 39 when accommodating the assembly 39 encompassed by the thermal insulative material in the casing 8. Further, when actually supplying exhaust gas, there was no leakage of the exhaust gas through the gaps in the outer surface 39c from the downstream side. It is thus apparent that exhaust gas is efficiently processed in the third embodiment.

40 (Example 3-2)

[0118] In example 3-2, the seal and smoothing paste was prepared by mixing and kneading 25wt% of a ceramic fiber (mullite fiber, shot content rate 5wt%, fiber length 0.1mm-100mm), 30wt% of silicon nitride powder having an average grain diameter of 1.0 $\mu$ m, 7wt% of alumina sol (the conversion amount of alumina sol being 20%) serving as an inorganic binder, 0.5wt% of poly vinyl alcohol serving as an organic binder, and 37.5wt% of alcohol. The other portions were formed in accordance with example 3-1 to complete the ceramic filter assembly 39.

[0119] Then, observations were made by the naked eye in the same manner as example 1. The pits 17 in the outer surface 39c were substantially completely filled by the smoothing layer 16. Further, there were no cracks in the boundary portions of the smoothing layer 16 and the seal layer 15. Accordingly, this indicates that the levels of adhesion and seal were high at the boundary portions.

50 [0120] No gaps were formed in the outer surface 39c of the assembly 39 during usage. In addition, leakage of exhaust gas through gaps in the outer surface 39c did not occur. It is thus apparent that exhaust gas was efficiently processed in example 3-2 in the same manner as example 3-1.

55

(Example 3-3)

[0121] In example 3-3, the seal and smoothing paste was prepared by mixing and kneading 23wt% of a ceramic

fiber (alumina fiber, shot content rate 4wt%, fiber length 0.1mm-100mm), 35wt% of boron nitride powder having an average grain diameter of 1μm, 8wt% of alumina sol (the conversion amount of alumina sol being 20%) serving as the inorganic binder, 0.5wt% of ethyl cellulose serving as the organic binder, and 35.5wt% of acetone. The other portions were formed in accordance with example 3-1 to complete the ceramic filter assembly 39.

- 5 [0122] Then, observations were made by the naked eye in the same manner as example 3-1. The pits 17 in the outer surface 39c were substantially completely filled by the smoothing layer 16. Further, there were no cracks in the boundary portions of the smoothing layer 16 and the seal layer 15. Accordingly, this indicates that the levels of adhesion and seal were high at the boundary portions.  
 10 [0123] No gaps were formed in the outer surface 39c of the assembly 39 during usage. In addition, leakage of exhaust gas through gaps in the outer surface 39c did not occur. It is thus apparent that exhaust gas was efficiently processed in example 3-3 in the same manner as example 3-1.

(Comparative Example)

- 15 [0124] In the comparative example, the smoothing layer 16 was not formed on the outer surface 39c. The other portions were formed in accordance with example 3-1 to complete a ceramic filter assembly.  
 20 [0125] Then, observations were made by the naked eye in the same manner as example 3-1. There were pits 17 in the outer surface 39c. Thus, gaps were formed in the outer surface 39c during usage of the assembly, and gas leakage through the gaps occurred. Accordingly, in comparison with examples 3-1 to 3-3, it is apparent that the exhaust gas processing efficiency was inferior.  
 25 [0126] Accordingly, the ceramic filter assembly 39 has the advantages described below.

(1) The smoothing layer 16 fills the pits 17 and smoothes the outer surface 39c. Accordingly, gaps are not formed in the outer surface 39c when the assembly 39 is retained. This prevents the leakage of exhaust gas. As a result, the ceramic filter assembly 39 has superior exhaust gas processing efficiency. This, in turn, results in the exhaust gas purification apparatus 1 having superior exhaust gas processing efficiency.

The smoothing layer 16 is made of ceramic and thus has superior adhesion with the filter F1, which is made of a sintered porous ceramic, and superior heat resistance. Accordingly, even if the assembly 39 is exposed to a high temperature of several hundred degrees Celsius, the smoothing layer 16 is not burned nor deformed. Thus, the desired adhesion strength is maintained.

(2) The thickness of the smoothing layer 16 is set in the preferred range of 0.1mm to 10mm. This prevents the leakage of exhaust gas without making the manufacture of the assembly 39 difficult.

(3) The seal layer 15 is thinner than the smoothing layer 16. This prevents the filtering capability and the thermal conductivity from decreasing.

(4) The smoothing layer 16 is made from the same material as the seal layer 15. Since the coefficient of thermal expansion of the smoothing layer 16 and that of the seal layer 15 are the same, the boundary portions of the seal and smoothing layer 15, 16 do not crack. In other words, high adhesiveness, sealing, and reliability of the boundary portions are ensured.

Further, a smoothing layer formation paste does not have to be prepared in addition to the seal layer formation paste. This facilitates the manufacture of the assembly 39 and avoids an increase in the manufacturing cost.

(5) The following may be used as the material for forming the seal layer 15 and the smoothing layer 16. An elastic material including at least an inorganic fiber, an inorganic binder, an organic binder, and inorganic particles and bound to one another by the inorganic binder and the organic binder may be used.

[0127] Such material has the advantage described below. The material has satisfactory adhesion strength in both low temperature and high temperature ranges. Further, the material is an elastic material. Thus, when thermal stress is applied, the thermal stress is relieved. Further, the material has superior thermal conductance. Thus, heat is uniformly and quickly conducted to the entire assembly 39. This enables efficient exhaust gas processing.

[0128] The third embodiment of the present invention may be modified as described below.

- 55 (a) As shown in Fig. 15, the present invention may be embodied in a ceramic filter assembly 321 by offsetting the filters F1 from one another in a direction perpendicular to the filter axial direction.  
 (b) The smoothing layer 16 may be formed from a ceramic material that differs from that of the seal layer 15.

(c) The smoothing layer 16 may have the same thickness as the seal layer 15 or may have a greater thickness than the seal layer 15.

5 (d) In addition to forming the smoothing layer 16 by employing an application technique, other methods, such as a printing technique, a staining technique, a dip technique, and a curtain coat technique, may be employed.

[0129] Fig. 16 is a schematic perspective view of a ceramic filter assembly 49 according to a fourth embodiment of the present invention. The ceramic filter assembly 49 is formed by a plurality of rectangular pole-like honeycomb filters F100.

10 [0130] In each honeycomb filter F100, the flow direction of the exhaust gas (direction perpendicular to the filter end surface), which is the processed fluid, is defined as the filter length L (mm). Further, the area obtained when cutting each honeycomb filter F100 in a direction perpendicular to the flow direction (in other words, parallel to the filter end surface) is defined as the filter cross-sectional area S ( $\text{mm}^2$ ).

15 [0131] In this case, the L/S value must be  $0.06\text{mm}/\text{mm}^2$  to  $0.75\text{mm}/\text{mm}^2$ . It is preferred that the L/S value be  $0.10\text{mm}/\text{mm}^2$  to  $0.60\text{mm}/\text{mm}^2$ , and most preferred that the L/S value be  $0.15\text{mm}/\text{mm}^2$  to  $0.40\text{mm}/\text{mm}^2$ .

20 [0132] When the L/S value exceeds  $0.75\text{mm}/\text{mm}^2$ , a temperature difference is produced in the longitudinal direction of the filter. As a result, a high level of thermal stress is applied to the honeycomb filter F100 thereby permitting cracks to easily form. On the other hand, when the L/S value is  $0.06\text{mm}/\text{mm}^2$  or less, a temperature difference is produced in a direction perpendicular to the filter longitudinal direction. This also applies a high level of thermal stress to the honeycomb filter F100 thereby permitting cracks to easily form.

25 [0133] It is specifically preferred that the filter length L be 120mm to 300mm, and especially preferred that the filter length be 140mm to 200mm. It is specifically preferred that the filter cross-sectional area S be  $400\text{mm}^2$  to  $2,500\text{mm}^2$ , and especially preferred that the cross-sectional area S be  $600\text{mm}^2$  to  $2,000\text{mm}^2$ , and especially preferred that the cross-sectional area S be  $600\text{mm}^2$  to  $2,000\text{mm}^2$ . When the values of L and S are outside the preferred range, a temperature difference is produced in the honeycomb filter F100. As a result, a large level of thermal stress easily forms.

#### (Example 4-1)

30 [0134] Basically, the same assembly 49 as that of example 1-1 was manufactured. The height W of the filter F100 was 33mm, the width W2 was 33mm, and the length L was 167mm. Accordingly, the filter cross-sectional area S was  $1,089\text{mm}^2$ , and the L/S value was  $0.15\text{mm}/\text{mm}^2$  ( $=167/1089$ ).

35 [0135] Then, the thermal insulative material 10 was wrapped around the assembly 49. In this state, the assembly was retained in the casing 8 and actually supplied with exhaust gas.

40 [0136] Referring to Fig. 18(A) and 18(B), thermocouples were embedded in each of locations P1 to P6 and temperatures T1 to T6 were respectively measured for a certain period, respectively. Further, maximum temperature differences  $\Delta T(\text{°C})$  at each of the locations P1 to P6 were obtained. The white arrow in the drawing shows the direction of the exhaust gas flow. The temperature measurement was conducted on the honeycomb filter F100 denoted with reference character X in Fig. 16.

45 [0137] After a predetermined time, the assembly 49 was taken out and the honeycomb filters F100 were each observed with the naked eye. As a result, the maximum temperature difference  $\Delta T(\text{°C})$  of example 4-1 was about  $5\text{°C}$ , the value of which is extremely small. Further, cracks were not confirmed in any of the honeycomb filters F100.

#### (Examples 4-2 to 4-6)

50 [0138] In examples 4 to 6, the assembly 49 was manufactured in the same manner as example 4-1. However, in example 4-2, the height W1 of each honeycomb filter F100 was set at 50mm, the width W2 was set at 50mm, and the length L was set at 150mm. Accordingly, the filter cross-sectional area S was  $2,500\text{mm}^2$ , and the L/S value was  $(150/2,500)= 0.06\text{mm}/\text{mm}^2$ .

55 [0139] In example 4-3, the height W1 was set at 20mm, the width W2 was set at 20mm, and the length L was set at 300mm. Accordingly, the filter cross-sectional area S was  $4,000\text{mm}^2$ , and the L/S value was  $(300/400)= 0.75\text{mm}/\text{mm}^2$ .

[0140] In example 4-4, the height W1 was set at 33mm, the width W2 was set at 33mm, and the length L was set at 230mm. Accordingly, the filter cross-sectional area S was  $1,089\text{mm}^2$ , and the L/S value was  $(230/1089)= 0.21\text{mm}/\text{mm}^2$ .

[0141] In example 4-5 the height W1 was set at 25m, the width W2 was set at 25m, and the length L was set at 300mm. Accordingly, the filter cross-sectional area S was  $625\text{mm}^2$ , and the L/S value was  $(300/625)= 0.48\text{mm}/\text{mm}^2$ .

[0142] In example 4-6 the height W1 was set at 22m, the width W2 was set at 22m, and the length L was set at 300mm. Accordingly, the filter cross-sectional area S was  $484\text{mm}^2$ , and the L/S value was  $(300/484)= 0.62\text{mm}/\text{mm}^2$ .

[0143] An experiment was conducted on the five types of assemblies 59 in the same manner as in example 4-1. As a result, the maximum temperature difference  $\Delta T(\text{°C})$  was about  $0\text{°C}$  to  $10\text{°C}$ , the values of which are extremely small.

Further, no cracks were confirmed in any of the honeycomb filters F100.

(Comparative Example 1)

- 5 [0144] In comparative example 1, the assembly 49 was manufactured in the same manner as in example 4-1. However, the height W1 of each honeycomb filter F100 was set at 20mm, the width W2 was set at 20mm, and the length L was set at 400mm. Accordingly, the filter cross-sectional area S was 1,000mm<sup>2</sup>, and the L/S value was (400/400=) 1.00mm/mm<sup>2</sup>.
- 10 [0145] An experiment was conducted on the assembly 49 in the same manner as in example 4-1. As a result, the maximum temperature difference  $\Delta T(^{\circ}\text{C})$  was about 30°C and greater than each embodiment. The length L in comparative example 1 was especially long. Thus, there was a tendency in a temperature difference being produced in the longitudinal direction of the filter.
- 15 [0146] Further, cracks were confirmed in some of the honeycomb filters F100, and the honeycomb filters F100 were damaged.

(Comparative Example 2)

- 20 [0147] In comparative example 2, the assembly 49 was manufactured in the same manner as in example 4-1. However, the height W1 was set at 70mm, the width W2 was set at 70mm, and the length L was set at 167mm. Accordingly, the filter cross-sectional area S was 4,900mm<sup>2</sup>, and the L/S value was (167/4,900=) 0.03mm/mm<sup>2</sup>.
- 25 [0148] An experiment was conducted on the assembly 49 in the same manner as in example 4-1. As a result, the maximum temperature difference  $\Delta T(^{\circ}\text{C})$  was about 20°C and greater than each embodiment. The filter cross-sectional area S in comparative example 2 was especially large. Thus, there was a tendency in a temperature difference being produced in a direction perpendicular to the longitudinal direction of the filter. Further, cracks were confirmed in some of the honeycomb filters F100, and the honeycomb filters F100 were damaged.
- [0149] The advantages of the ceramic filter assembly 49 of the fourth embodiment will be discussed below.
- 30 [0150] (1) By setting the ratio L/S between the filter length L and the filter cross-sectional area in the preferable range, the production of a large thermal stress is prevented without producing a large temperature difference in each of the honeycomb filters F100. This prevents cracks from being produced in the honeycomb filters F100 and the honeycomb filters F100 resist being damaged. Due to the increase in the strength of each honeycomb filter F100, the ceramic filter assembly 49 is manufactured with superior strength. Further, the employment of the assembly 49 increases the strength of the exhaust gas purification apparatus 1 and enables usage over a long period.
- 35 [0151] The fourth embodiment may be modified as described below.
- (a) As long as the condition of the L/S value being in the range of 0.06mm/mm<sup>2</sup> to 0.75mm/mm<sup>2</sup> is satisfied, the form of the honeycomb filter F100 may be changed to a cylindrical pole-like shape, a triangular pole-like shape, or a hexagonal pole-like shape.
- 40 (b) In addition to using the honeycomb filters F100 as a member forming the ceramic filter 49, the honeycomb filter F100 may be used as an independent filter.

- [0152] Fig. 19 is a perspective view showing a honeycomb filter 59 having a honeycomb structure according to a fifth embodiment of the present invention. Fig. 20 is a cross-sectional view taken along line 20-20 of the filter 59 of Fig. 19. Fig. 21 is a cross-sectional view showing a main portion of an exhaust gas purification apparatus.
- 45 [0153] It is preferred that the cell density of the honeycomb filter 59 be 120/inch<sup>2</sup> (18/cm<sup>2</sup>) or greater, and more specifically, be in the range of 120 to 180/inch<sup>2</sup>. When the cell density is less than 120, the area of contact with the exhaust gas decreases. This lowers the purification capability of the honeycomb filter 9.
- [0154] It is preferred that the thickness of the cell wall 13 be 0.46mm or less, and more specifically be in the range of 0.20 to 0.46mm. When the thickness of the cell wall 13 exceeds 0.46mm, the opening area of the cell decreases and the area of contact with the exhaust gas decreases. This lowers the purification capability of the honeycomb filter 9. Further, if the cell wall 13 is made thicker than 0.46mm while maintaining the cell opening area, the entire honeycomb filter 9 is enlarged.
- 50 [0155] It is preferred that the average pore diameter of the honeycomb filter 9 be 5μm to 15μm, and further preferred that the average pore diameter be 8μm to 12μm. If the average pore diameter is less than 5μm, the deposit of particulates clogs the honeycomb filter 9. This increases pressure loss. Thus, the driving performance of the vehicle falls, fuel efficiency decreases, and the driving feel becomes unsatisfactory. On the other hand, if the average pore diameter exceeds 50μm, fine particles cannot be trapped. This decreases the trapping efficiency and deteriorates the particulate filtering function.

EP 1 142 619 A1

[0156] It is preferred that the porosity of the honeycomb filter 9 be 30% to 50%, and further preferred that the porosity be 35% to 49%. If the porosity is less than 30%, the honeycomb filter 9 becomes too dense. This hinders the interior flow of exhaust gas. If the porosity exceeds 50%, the number of pores in the honeycomb filter 9 becomes excessive. This may decrease the strength and lower the trapping efficiency of fine particles.

5 [0157] Among the pores of the honeycomb filter 9, it is preferred that 20% or more be through pores. More specifically, it is preferred that 20% to 80% be through pores, and especially preferred that 20% to 50% be through bores. A through bore refers to a gap that extends through a cell wall 13 and connects adjacent holes 12. If the through pores are less than 20% of the pores, the pressure loss becomes large. Thus, the driving performance of the vehicle falls, fuel efficiency decreases, and the driving feel becomes unsatisfactory. On the other hand, if the through pores exceed 80% of the pores, manufacture may become difficult and cause stable material supply to be difficult.

10 [0158] It is preferred that total volume of the honeycomb filter 9 be 1/4 to 2 times the total displacement of the engine. It is further preferred that the total volume be 1/2 to 1.5 times the total displacement. If the value is less than 1/4, the deposit of particulates clogs the honeycomb filter 9. If the value exceeds 2 times, the honeycomb filter 9 is enlarged. When the honeycomb filter 9 is enlarged, there is a tendency of the temperature differing between portions of the filter 15 9 during combustion. This increases the thermal stress applied to the honeycomb filter 9 and increases the possibility of the formation of cracks.

20 [0159] The honeycomb filter 9 is made of sintered porous silicon carbide, which is a type of sintered carbide. The impurities included in the sintered porous silicon carbide is 5wt% or less. It is preferred that the amount of impurities be 1wt% or less and it is especially preferred that the amount of impurities be 0.1wt% or less. If the impurities exceed 5wt%, impurities concentrate at the grain boundary of the silicon carbide crystal grains and significantly decreases the strength at the grain boundary (strength bonding crystal grains). This makes the grain boundary vulnerable to breakage. Impurities include Al, Fe, O and free C. Like the honeycomb filter 9, the honeycomb filter 9 is made of sintered porous silicon carbide.

25 (Example 5-1)

[0160] Basically, in the same manner as the example 4-1, the through holes 12 of the molded product were dried with a microwave dryer and then sealed with a sealing paste made of sintered porous silicon carbide. Afterward, the drier was used again to dry the sealing paste. Subsequent to the end sealing process, the dried product was degreased at 400°C and then sintered for about three hours at 2,250°C in an argon atmosphere under normal pressure.

30 [0161] As a result, the produced sintered porous silicon carbide honeycomb filter 59 had a pore diameter of 10μm, a porosity of 42%, a through pore existence rate of 25% relative to the pores, a cell density of 150/inch<sup>2</sup>, and a cell wall 13 thickness of 0.4mm. The honeycomb filter 59 had a diameter of 100mm, a length of 200mm, and a total volume of 2,300cm<sup>3</sup>. The total volume refers to the volume obtained by subtracting the volume of the through holes 12 from the volume of the entire honeycomb filter 59. It is preferred that the thickness of the cell wall 13 be 0.46mm or less, and more specifically, in the range of 0.20 to 0.46mm.

35 [0162] Then, the honeycomb filter 59 was wrapped around the honeycomb filter 59. In this state, the honeycomb filter 59 was retained in the casing. An engine having a displacement of about 3,000cc was then used to supply the exhaust gas purification apparatus 1 with exhaust gas at a flow rate of 7m/sec. In this state, the pressure value of the exhaust gas at the upstream side of the honeycomb filter 59 and the pressure value of the exhaust gas at the downstream side were measured. A pressure loss ΔP (mmAq), which is the difference between the values, was obtained. Further, the amount of soot at the rear side of the honeycomb filter 59 was measured to confirm the amount of particulates that were not trapped. Further, a certain time period, the honeycomb filter 59 was taken out and observed with the naked eye to confirm cracks. The results are shown in table 1.

45

50

55

Table 1

	Type of Ceramic	Average Pore Diameter ( $\mu\text{m}$ )	Average Porosity (%)	Existence Pores (%)	Pressure Loss $\Delta P$ (mmHg)	Soot Behind Filter (g/km)	Flexural Strength (MPa)	Total Filter Volume ( $\text{cm}^3$ )	Cracks
Example 1	Silicon Carbide	10	42	25	80	0.01	6.5	2300	None
Example 2	Silicon Carbide	6	38	30	100	0.01	6.2	2300	None
Example 3	Silicon Carbide	14	48	45	60	0.015	6.0	2300	None
Comparative Example 1	Silicon Carbide	3	10	10	300	0.005	7.2	700	None
Comparative Example 2	Silicon Carbide	20	70	15	40	0.04	2.5	7000	Confirmed
Comparative Example 3	Cordierite	30	20	15	120	0.015	3.1	700	Confirmed

## EP 1 142 619 A1

[0163] As shown in table 1, the pressure loss  $\Delta P$  in example 5-1 was about 80mmAq, the value of which is extremely small. The particulate leakage amount was about 0.01g/km, the value of which is extremely small. The honeycomb filter 59 had a flexural strength of 6.5Mpa and had an extremely high level of mechanical strength. There were no cracks in the honeycomb filter 59.

5

(Example 5-2, 5-3)

[0164] In examples 5-2 and 5-3, the honeycomb filter 59 was manufactured basically in the same manner as in example 5-1. However, in examples 5-2 and 5-3, only the total volume of the honeycomb filter 59 was the same as that of example 5-1. The mixture ratio, sintering temperature, sintering time, etc. were changed as described below to adjust the pore diameter, porosity, and the through pore existence rate relative to the pores.

[0165] In the produced sintered porous silicon carbide honeycomb filter 59 of example 5-2, the pore diameter was 6  $\mu\text{m}$ , the porosity was 32%, and the through pore existence rate was 30%. The same experiment as that of example 5-1 was conducted. The pressure loss  $\Delta P$  was about 100mmAq, the value of which is extremely small. The particulate leakage amount was about 0.01g/km, the value of which is extremely small. The honeycomb filter 59 had a flexural strength of 6.2Mpa and had an extremely high level of mechanical strength. Further, there were no cracks in the honeycomb filter 59.

[0166] In the produced sintered porous silicon carbide honeycomb filter 59 of example 5-3, the pore diameter was 14  $\mu\text{m}$ , the porosity was 48%, and the through pore existence rate was 45%. In the experiment result of this example, the pressure loss  $\Delta P$  was about 60mmAq, the value of which is extremely small. The particulate leakage amount was about 0.015g/km, the value of which is extremely small. The honeycomb filter 59 had a flexural strength of 6.0Mpa and had an extremely high level of mechanical strength. There were no cracks in the honeycomb filter 59.

(Comparative Examples 1 to 3)

[0167] In comparative examples 1 to 3, honeycomb filters were manufactured basically in the same manner as in example 5-1. However, in comparative example 1, the total volume of the honeycomb filter was 700cm<sup>3</sup>, which is less than 1/4 the displacement (3,000cc). Further, the pore diameter, porosity, and the through pore existence rate relative to the pores was as described below.

[0168] In the produced sintered porous silicon carbide honeycomb filter of comparative example 1, the pore diameter was 3  $\mu\text{m}$ , the porosity was 10%, and the through pore existence rate was 10%. In the experiment result of comparative example 1, the pressure loss  $\Delta P$  was about 300mmAq, the value of which is extremely large. The particulate leakage amount was about 0.005g/km, the value of which is extremely small. The honeycomb filter had a flexural strength of 7.2Mpa and had an extremely high level of mechanical strength. There were no cracks in the honeycomb filter.

[0169] In comparative example 2, the total volume of the honeycomb filter was greater than that of examples 1-3 and was 7,000cm<sup>3</sup>, which is two times or greater than the displacement (3,000cc). Further, in the produced sintered porous silicon carbide honeycomb filter, the pore diameter was 20  $\mu\text{m}$ , the porosity was 70%, and the through pore existence rate was 15%. In the experiment result of comparative example 2, the pressure loss  $\Delta P$  was about 40mmAq, the value of which is extremely small. The particulate leakage amount was about 0.04g/km, the value of which is extremely small. The honeycomb filter had a flexural strength of 2.5Mpa and satisfactory mechanical strength was not obtained. There were no cracks in the honeycomb filter.

[0170] In comparative example 3, a cordierite honeycomb filter was produced through a known manufacturing method that differs from the manufacturing method of comparative examples 1 and 2. The total volume of the honeycomb filter was 700cm<sup>3</sup>. In the honeycomb filter, the pore diameter was 30  $\mu\text{m}$ , the porosity was 20%, and the through pore existence rate was 15%. In the experiment result of comparative example 3, the pressure loss  $\Delta P$  was about 120mmAq, the value of which is large. The particulate leakage amount was about 0.015g/km, the value of which is large. The honeycomb filter had a flexural strength of 3.1Mpa and satisfactory mechanical strength was not obtained. There were no cracks in the honeycomb filter.

[0171] Table 1 shows the comparison result of examples 5-1 to 5-3 and comparative examples 1 to 3, as described above.

(Experiment Result)

[0172] As apparent from table 1, it was confirmed that exhaust gas passed smoothly through all of the honeycomb filters 59 in examples 5-1 to 5-3. Further, the particulate leakage amount was substantially null, and the required mechanical strength of the honeycomb filter was obtained. In comparison, the required mechanical strength of the honeycomb filter was obtained in comparative example 1. However, exhaust gas did not pass smoothly through the honeycomb filter. Further, in comparison example 2, exhaust gas passed smoothly through the honeycomb filter. However,

the required mechanical strength was not obtained. In example 3, exhaust gas did not pass smoothly through the honeycomb filter, and the required mechanical strength was not obtained.

[0173] The advantages of the honeycomb filter 59 of the fifth embodiment will now be discussed.

- (1) The sintered porous silicon carbide honeycomb filter 59 is arranged in the casing 8. The honeycomb filter 9 is formed so that the average pore diameter is 5 to 15 $\mu\text{m}$ , the average porosity is 30 to 40%, and the through pore existence rate relative to the pores is 20% or greater. Since the honeycomb filter 9 is not excessively dense, exhaust gas passes smoothly through the interior, and pressure loss is decreased. This improves fuel efficiency and prevents deterioration of the driving feel. Further, since the amount of gaps in the honeycomb filter 9 is not excessive, fine particulates are trapped and the trapping efficiency is improved. Additionally, even if the honeycomb filter 9 is porous, satisfactory mechanical strength is obtained. Thus, the produced honeycomb filter 9 resists breakage caused by vibrations and thermal impact.
- (2) The honeycomb filter 9 is formed so that the average pore diameter is 8 to 12 $\mu\text{m}$ , the average porosity is 35 to 49%, and the through pore existence rate relative to the pores is 20 to 50% or greater. Thus, the pressure loss is further decreased, and the strength is increased.
- (3) The end surfaces of the honeycomb filter 9 so that the sealing bodies 14 seal the cells alternately. The number of cells per square inch is 120 or more, and the thickness of the cell wall 13 is 0.46mm or less. This increases the area of contact with the exhaust gas and increases the purification capability of the honeycomb filter 9.
- (4) The total volume of the honeycomb filter 9 is 1/4 to 2 times the total displacement of the diesel engine 2. Since the deposit amount of the particulates does not become excessive, clogging of the honeycomb filter 9 is prevented. Further, the honeycomb filter 9 is not enlarged. This prevents the occurrence of temperature differences between different locations of the honeycomb filter 9 during combustion. Accordingly, the thermal stress applied to the honeycomb filter 9 is decreased and cracks are not produced.

[0174] The fifth embodiment may be modified as described below.

- (a) The form of the honeycomb filter 9 is not limited to a cylindrical pole-like shape and may be changed to a cylindrical pole-like shape, a triangular pole-like shape, or a hexagonal pole-like shape.
- (b) As shown in Fig. 22, a plurality (16) of honeycomb filters 523 may be integrated to manufacture a ceramic filter assembly 521. In each polygonal honeycomb filter 523, the average pore diameter is 8 to 12 $\mu\text{m}$ , the average porosity is 35 to 49%, and 20 to 50% of the pores are through pores. The outer surfaces of the honeycomb filters 523 are connected to one another by a ceramic seal layer 522.

[0175] In a sixth embodiment, a specific surface area of the particles forming the cell wall 13 of the honeycomb filter 59 is 0.1 $\text{m}^2/\text{g}$  or more, and more specifically, 0.1 to 1 $\text{m}^2/\text{g}$ . If the specific surface area of the cell walls 13 is 0.1 $\text{m}^2/\text{g}$  or less, the deposit of the particulates clogs the honeycomb filter 59. This increases pressure loss and thus decreases the fuel efficiency of the vehicle and degrades the driving feel. If the specific surface area exceeds 1.0 $\text{m}^2/\text{g}$ , fine particulates cannot be trapped. This decreases the trapping efficiency and causes the filtering function of the honeycomb filter 59 to become unsatisfactory.

[Example 6-1]

[0176] A honeycomb filter 59 was produced basically in the same manner as that of example 5-1 and the specific surface area of the particles forming the cell wall 13 was 0.3 $\text{m}^2/\text{g}$ . In example 6-2 and the comparative example, honeycomb filters 59 were produced basically in the same manner as example 5-1. The specific surface area of the honeycomb filter 59 of example 6-2 was 0.8 $\text{m}^2/\text{g}$ , and the specific surface area of the honeycomb filter 59 of the comparative example was 0.05 $\text{m}^2/\text{g}$ . In each of the honeycomb filters 50 of examples 6-1, 6-2 and the comparative example, the cell density was 150/inch<sup>2</sup> and the thickness of the cell wall 13 was 0.4mm.

[0177] The honeycomb filter 59 was wrapped by the thermal insulative material 10. In this state, the honeycomb filter 59 was retained in the casing 8. A diesel engine 2 having a displacement of about 3,000cc was then used to supply the exhaust gas purification apparatus 1 with exhaust gas at a flow rate of 9m/sec. In this state, the pressure value of the exhaust gas at the upstream side of the honeycomb filter 59 and the pressure value of the exhaust gas at the downstream side were measured. A pressure loss  $\Delta P$  (mmAq), which is the difference between the values, was obtained. The results are shown in table 2.

Table 2

	Example 1	Example 2	Comparative Example
Specific Surface Area ( $\text{cm}^2/\text{g}$ )	0.3	0.8	0.05
Particulate Pressure Loss (mmAq)	180	120	250

[0178] As apparent from table 2, the pressure loss  $\Delta P$  of the honeycomb filters 59 in example 6-1, example 6-2, and the comparative example was 180mmAq, 120mmAq, and 250mmAq, respectively. Accordingly, in examples 6-1 and 6-2, a large pressure loss such as that of the comparative example was not confirmed.

[0179] The honeycomb filter 59 of the sixth embodiment has the advantages described below.

(1) In the honeycomb filter 9, the specific surface area of the particles forming the cells wall 13 is  $0.1\text{m}^2/\text{g}$  or greater. Since the honeycomb filter 9 does not become excessively dense, exhaust gas passes smoothly through the interior, and the pressure loss is decreased. Accordingly, fuel efficiency is improved and degradation of the driving feel is prevented. In addition, the upper limit of the specific surface area of the particles is  $1.0\text{m}^2/\text{g}$ . Thus, the gap amount of the honeycomb filter 9 is not excessive and the trapping of fine particles is ensured. This improves the trapping efficiency.

(2) The sintered silicon carbide cell wall 13 has superior heat resistance. This prevents the cell wall 13 from being deformed or burned away. Accordingly, fluid is efficiently purified over a long time period.

(3) The porous cell wall 13 enables smooth passage of the exhaust gas and further decreases power loss. In addition, the trapping efficiency of particulates is further increased.

[0180] The sixth embodiment may be modified as described below.

[0181] A plurality (16) of honeycomb filters may be integrated to manufacture a ceramic filter assembly. The specific surface area of the cell wall of each honeycomb filter is  $0.1$  to  $1\text{m}^2/\text{g}$ .

#### INDUSTRIAL APPLICABILITY

[0182] The ceramic filter assembly of the present invention may be applied to an exhaust gas purification filter of a diesel engine 2, a heat exchange device member, a filter for high temperature fluid or high temperature vapor, etc.

#### Claims

1. An integral ceramic filter assembly (9) produced by adhering with a ceramic seal layer (15) outer surfaces of a plurality of filters (F1), each of which is formed from a sintered porous ceramic body, the ceramic filter assembly being characterized in that:  
the seal layer (15) has a thickness ( $t1$ ) of 0.3mm to 3mm and a thermal conductance of  $0.1\text{W}/\text{mK}$  to  $10\text{W}/\text{mK}$ .
2. The ceramic filter assembly according to claim 1, wherein the seal layer includes 70wt% or less of ceramic fiber as a solid.
3. The ceramic filter assembly according to claim 1 or 2, wherein the seal layer includes ceramic fibers having fiber lengths of 100mm or less.
4. The ceramic filter assembly according to any one of claims 1 to 3, wherein the seal layer includes as a solid 3wt% to 80wt% of an inorganic grain.
5. An integral ceramic filter assembly (29) produced by adhering with a ceramic seal layer (15) outer surfaces of a plurality of elongated polygonal honeycomb filters (F1), each of which is formed from a sintered porous ceramic body, the ceramic filter assembly being characterized by:  
round surfaces (18) defined on chamfered corners of the outer surface of each honeycomb filter, wherein the round surfaces have a curvature R of 0.3 to 2.5.

6. An integral ceramic filter assembly (39) produced by adhering with a ceramic seal layer (15) outer surfaces of a plurality of filters (F1), each of which is formed from a sintered porous ceramic body, the ceramic filter assembly being characterized by:  
a ceramic smoothing layer (16) applied to the outer surface of the assembly, which as a whole has a generally circular cross-section or generally oval cross-section.
  7. The ceramic filter assembly according to claim 6, wherein the smoothing layer has a thickness of 0.1mm to 10mm.
  8. The ceramic filter assembly according to claim 6 or 8, wherein the seal layer is thinner than the smoothing layer.
  9. The ceramic filter assembly according to any one of claims 6 to 8, wherein the smoothing layer is made from the same material as the seal layer.
  10. An integral ceramic filter assembly (49) produced by adhering with a ceramic seal layer (15) outer surfaces of a plurality of elongated honeycomb filters (F100), each of which is formed from a sintered porous ceramic body, the ceramic filter assembly being characterized in that:  
a ratio L/S between a filter length L in a flow direction of a processed fluid and a filter cross-section S in a direction perpendicular to the flow direction is 0.06mm/mm<sup>2</sup> to 0.75mm/mm<sup>2</sup>.
  11. The ceramic filter assembly according to any one of claims 1 to 10, wherein the assembly is a diesel particulate filter.
  12. The ceramic filter assembly according to any one of claims 1 to 11, wherein the filter is formed from a sintered porous silicon carbide body.
  13. The ceramic filter assembly according to any one of claims 1 to 12, wherein the seal layer includes at least an inorganic fiber, an inorganic binder, an organic binder, and an inorganic grain and is formed from an elastic material obtained by bonding the inorganic fiber, which are three-dimensionally interlinked, and the inorganic grain with the inorganic binder and the organic binder.
  14. The ceramic filter assembly according to any one of claims 1 to 13, wherein the seal layer is formed from 10wt% to 70wt% of silica-alumina ceramic fiber as a solid, 1wt% to 30wt% of silica sol, 0.1wt% to 5.0wt% of carboxymethyl cellulose, and 3wt% to 80wt% of silicon carbide powder.
  15. The ceramic filter assembly according to any one of claims 1 to 14, wherein the filters are arranged in a state offset from one another in a filter axial direction.
  16. An integral honeycomb filter assembly (521) produced by adhering with a ceramic seal layer (522) outer surfaces of a plurality of honeycomb filters (523), each of which has a plurality of cells defined by a cell wall (13) and which purifies fluid including particulates with the cell wall, the honeycomb filter assembly being characterized in that:  
a specific surface area of grains forming the cell wall is 0.1m<sup>2</sup>/g or more.
  17. An elongated honeycomb filter (F100) formed from a sintered porous ceramic body, the honeycomb filter being characterized in that:  
a ratio L/S between a filter length L in a flow direction of a processed fluid and a filter cross-section S in a direction perpendicular to the flow direction is 0.06mm/mm<sup>2</sup> to 0.75mm/mm<sup>2</sup>.
  18. A honeycomb filter (F100) formed from a sintered porous ceramic body, the honeycomb filter being characterized in that:  
an average pore diameter of the honeycomb filter is 5 to 15μm, an average porosity is 30 to 50%, and the honeycomb filter has 20% or more of through pores.
  19. The honeycomb filter according to claim 18, wherein the average pore diameter is 8 to 12μm, the average porosity is 35 to 49%, and the ratio of through pores is 20 to 50%.
  20. The honeycomb filter according to claim 18 or 19 comprising a plurality of cells including a first cell having a first end surface sealed by a sealing body (14) and a second cell adjacent to the first cell by way of a cell wall and having a second end surface opposite to the first end surface sealed by a sealing body, wherein the cell number per square inch is 120 or more, and the thickness of the cell wall defining the cells is 0.46mm or less.

EP 1 142 619 A1

21. A honeycomb filter (59) having a plurality of cells defined by a cell wall (13) and purifying fluid including particulates with the cell wall, the honeycomb filter being characterized in that:  
a specific surface area of grains forming the cell wall is  $0.1\text{m}^2/\text{g}$  or more.
- 5    22. The honeycomb filter according to claim 21, wherein the cell wall is formed from a sintered silicon carbide body.
23. The honeycomb filter according to claim 21 or 22, wherein the cell wall is formed from a porous body.
- 10    24. An exhaust gas purification apparatus including a honeycomb filter (59) formed from a sintered porous ceramic body and arranged in a casing (8) that is located in an exhaust gas passage of an internal combustion engine (2) to eliminate particulates included in exhaust gas, the exhaust gas purification apparatus being characterized in that:  
an average pore diameter of the honeycomb filter is 5 to  $15\ \mu\text{m}$ , an average porosity is 30 to 40%, and the honeycomb filter has 20% or more of through pores.
- 15    25. The exhaust gas purification apparatus according to claim 24, wherein the average pore diameter of the honeycomb filter is 8 to  $12\mu\text{m}$ , the average porosity is 35 to 49%, and the honeycomb filter has 20 to 50% or more of through pores.
- 20    26. The exhaust gas purification apparatus according to claim 24 or 25 comprising a plurality of cells including a first cell having a first end surface sealed by a sealing body (14) and a second cell adjacent to the first cell by way of a cell wall and having a second end surface opposite to the first end surface sealed by a sealing body, wherein a cell number per square inch is 120 or more, and the thickness of the cell wall defining the cells is 0.46mm or less.
- 25    27. The exhaust gas purification apparatus according to any one of claims 24 to 26, wherein the total volume of the honeycomb filter is  $1/4$  to 2 times the total displacement of the internal combustion engine.

30

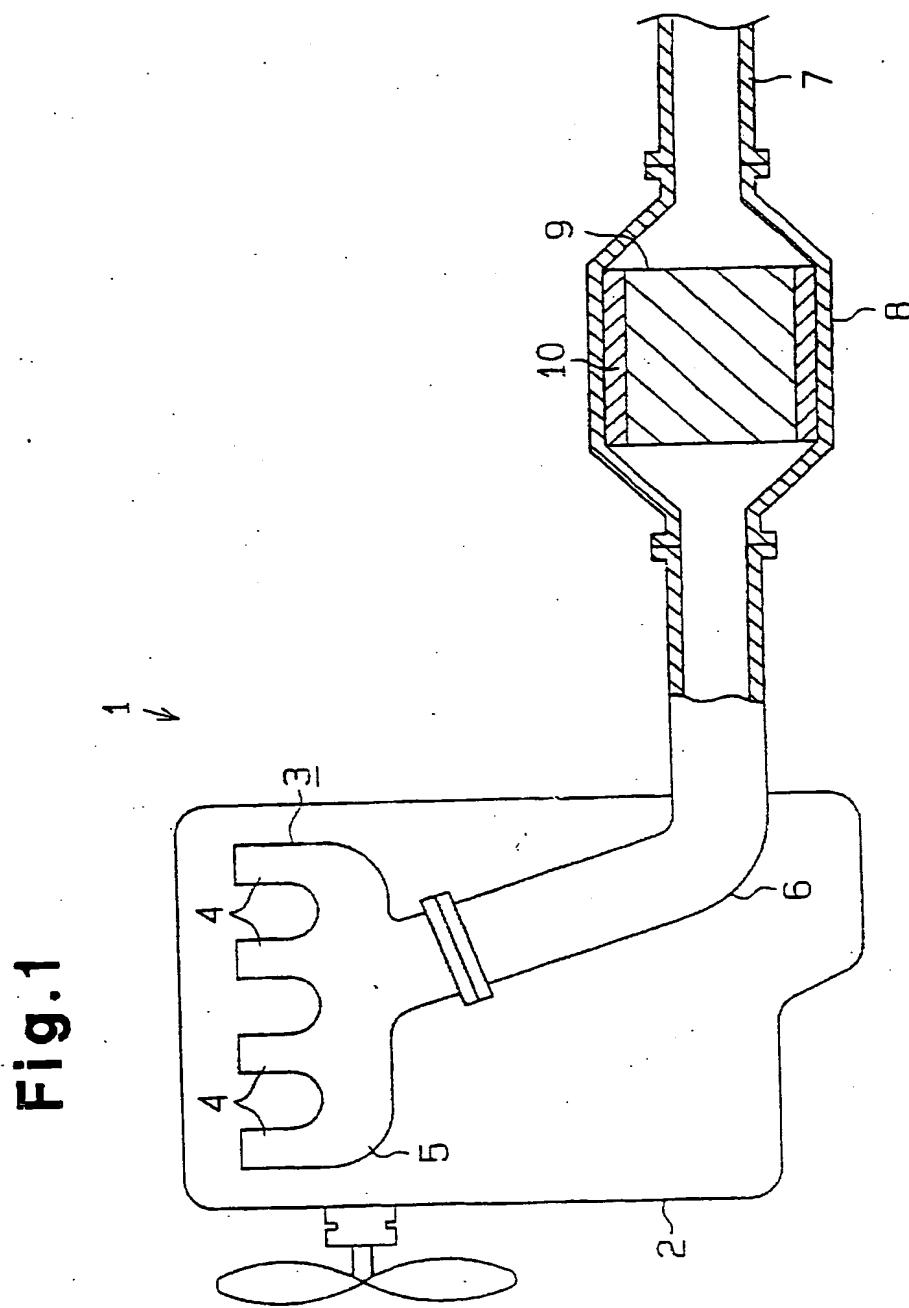
35

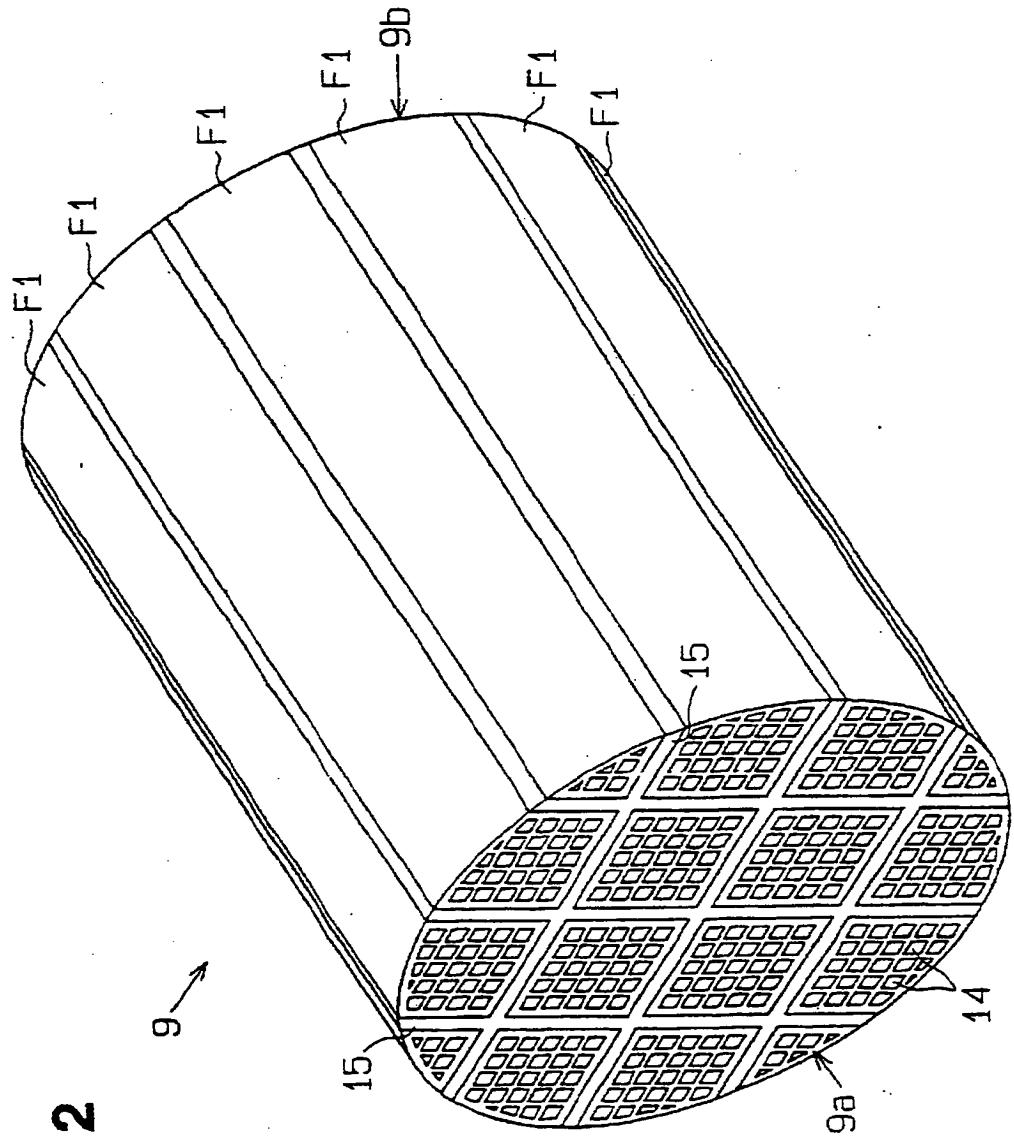
40

45

50

55





**Fig. 2**

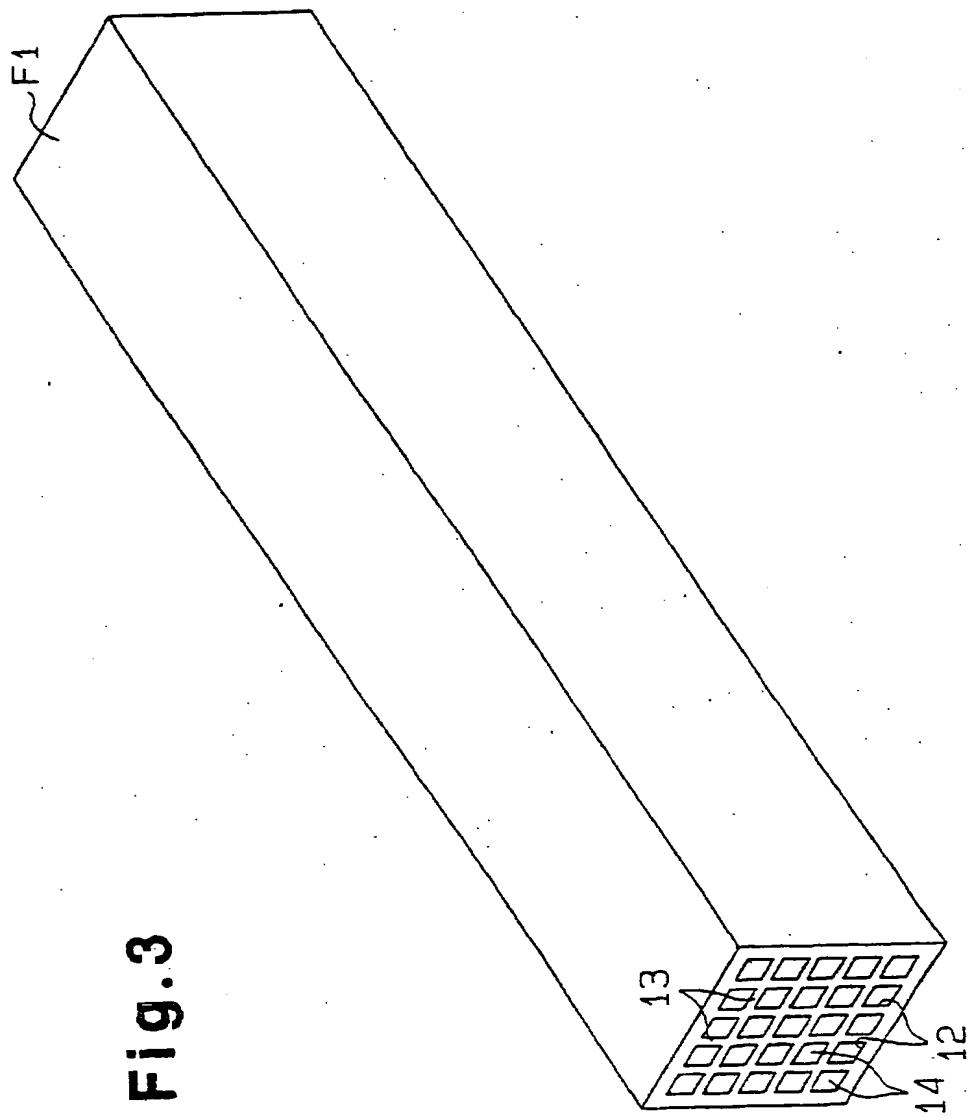


Fig. 3

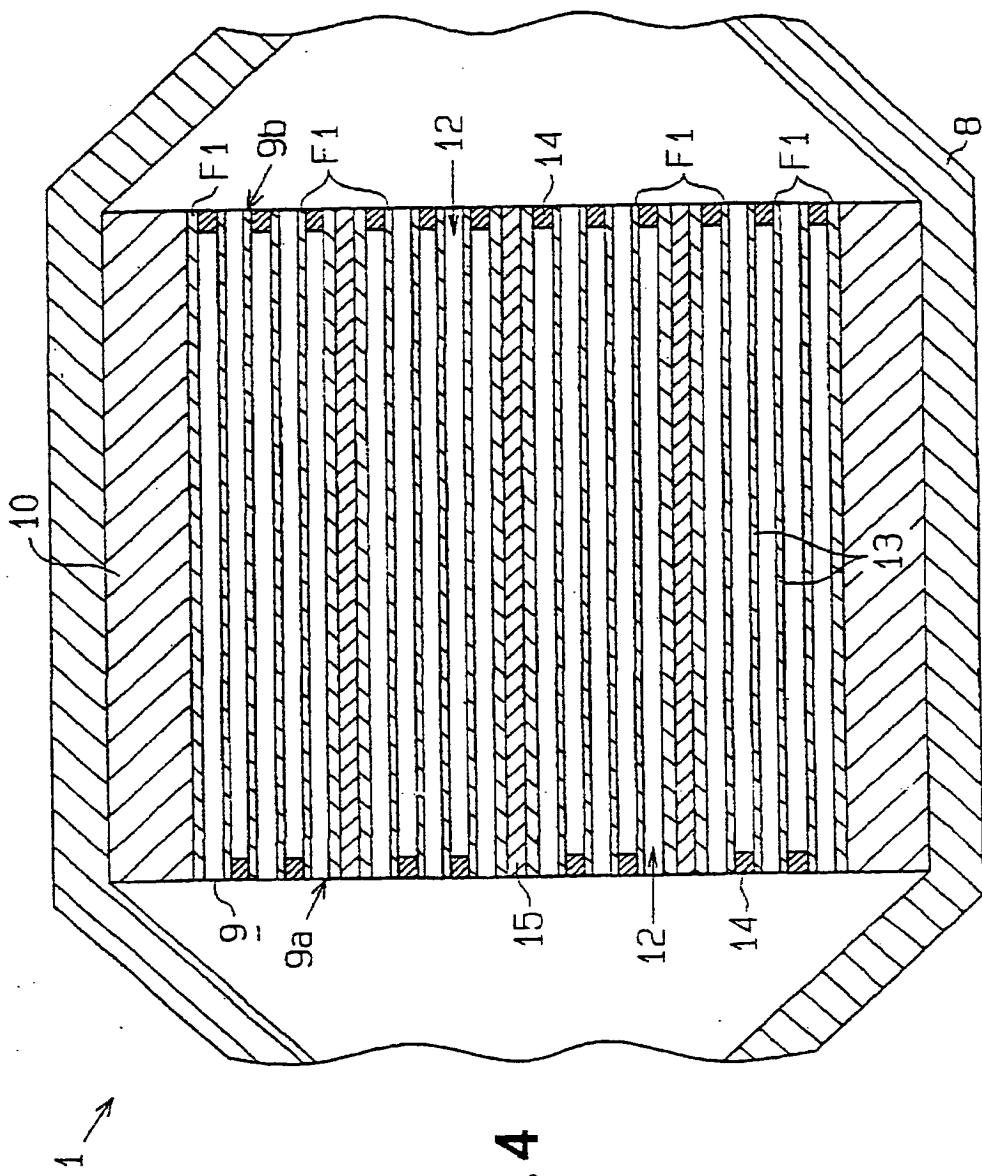
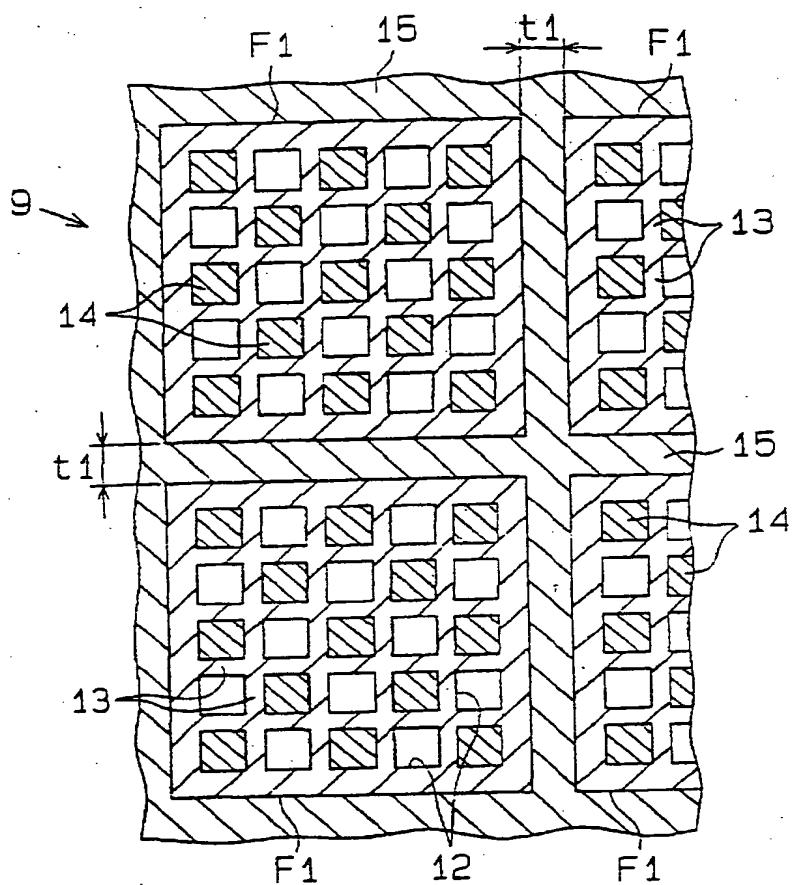
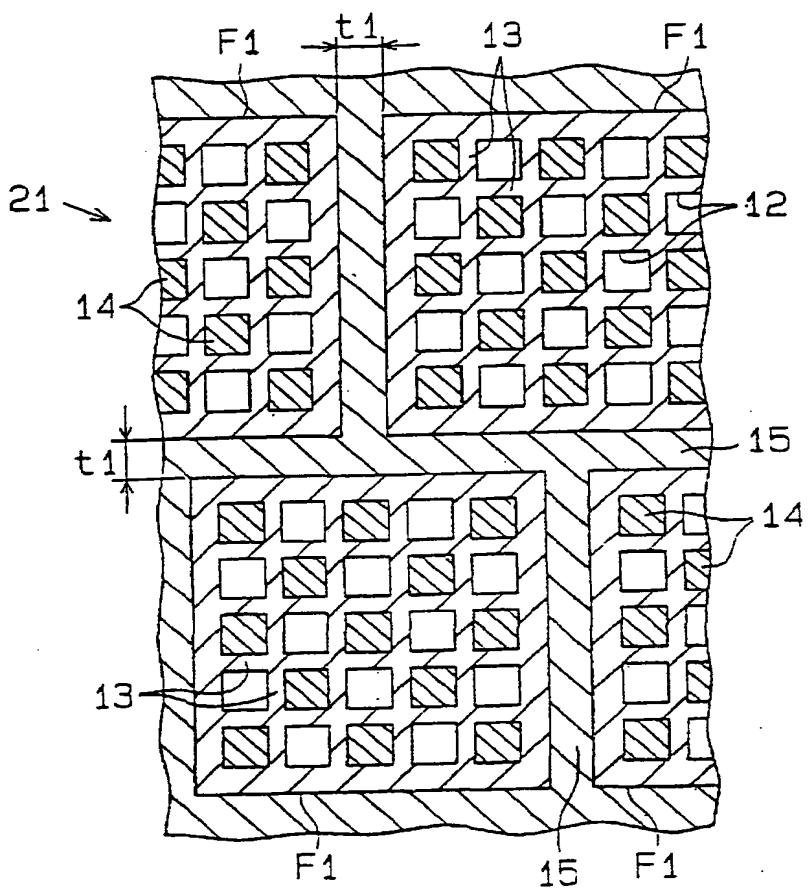


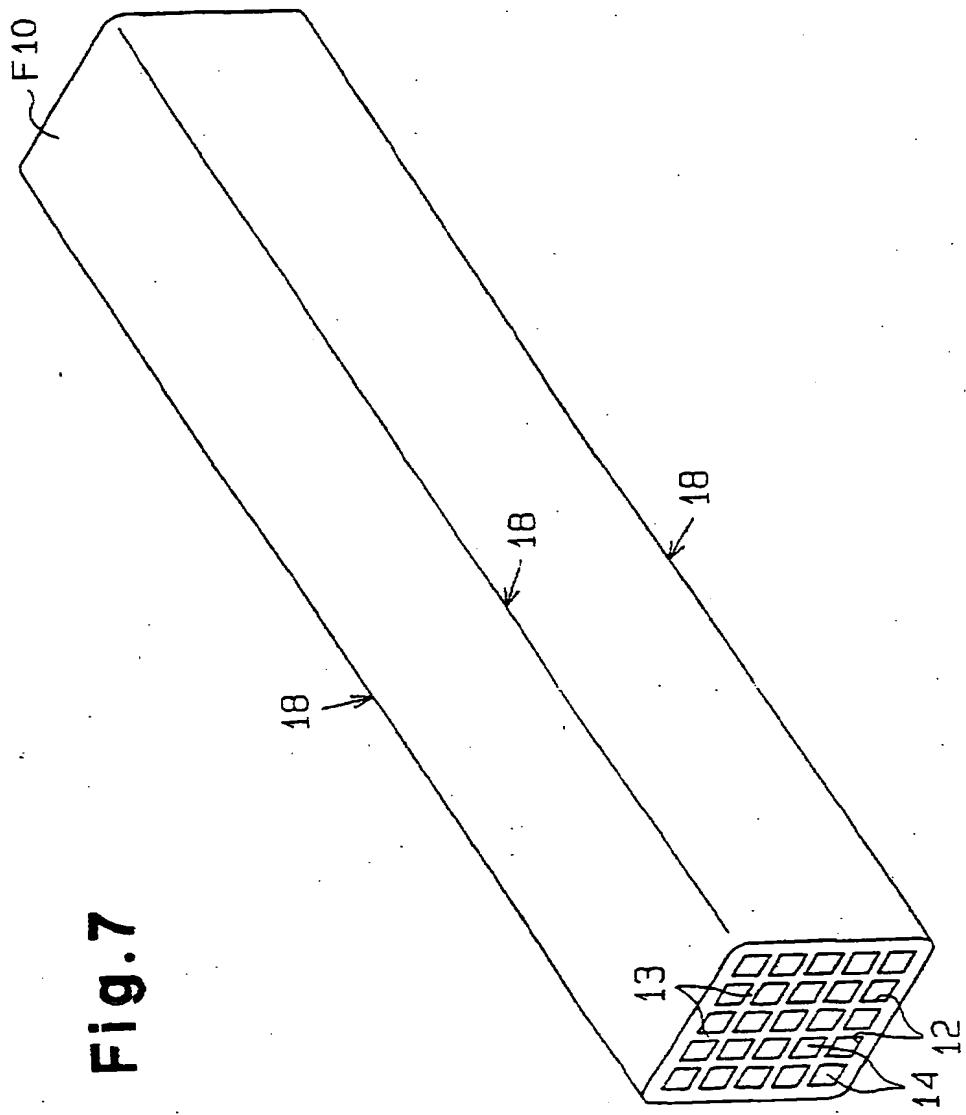
Fig. 4

**Fig.5**



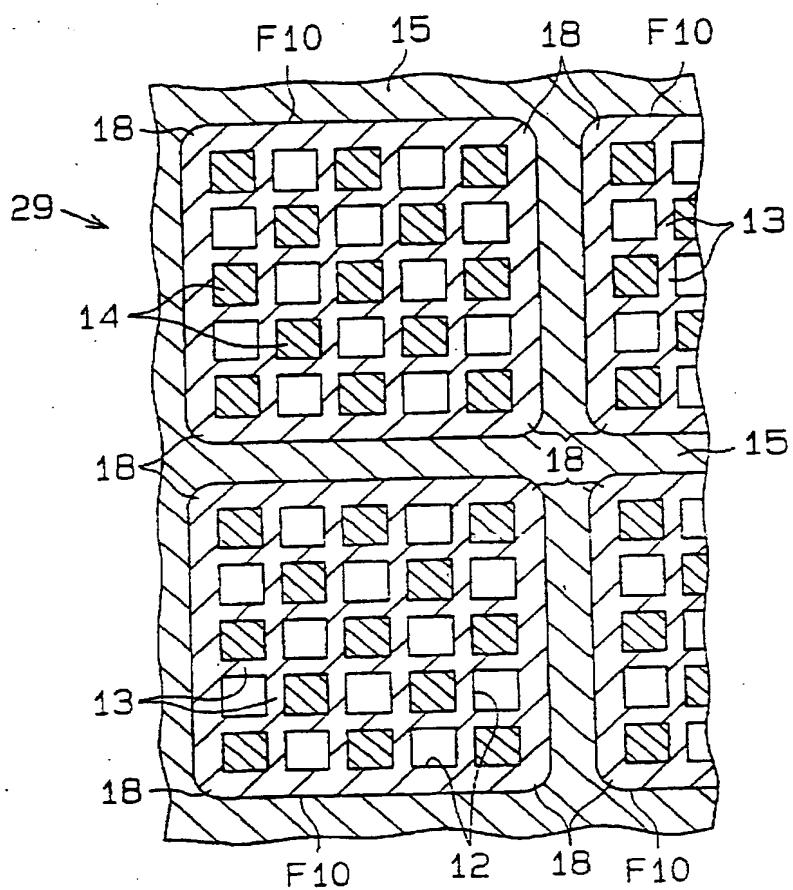
**Fig. 6**



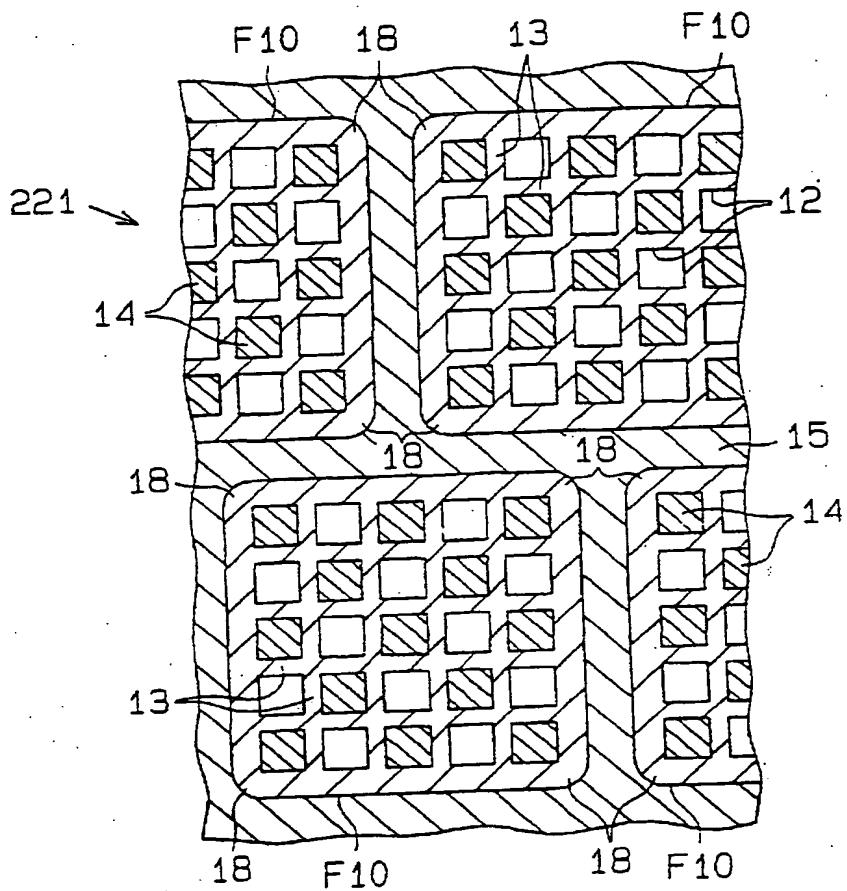


**Fig. 7**

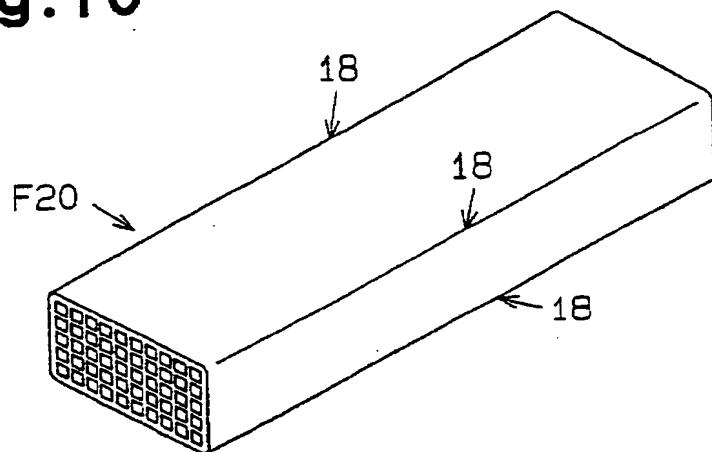
**Fig. 8**



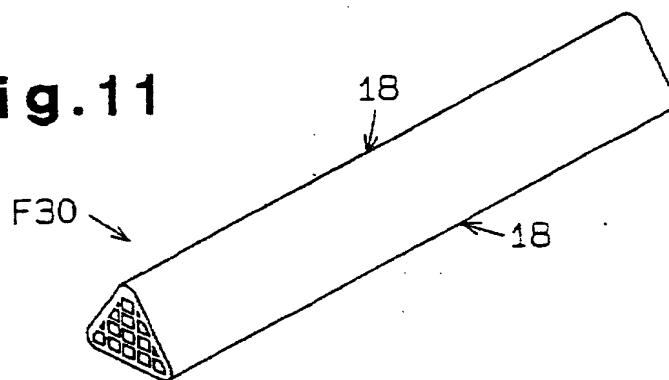
**Fig. 9**



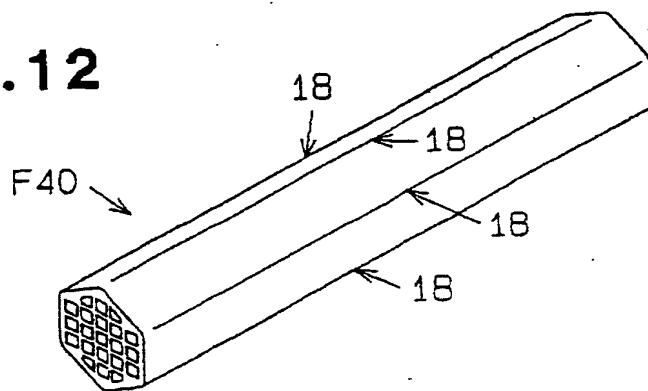
**Fig.10**



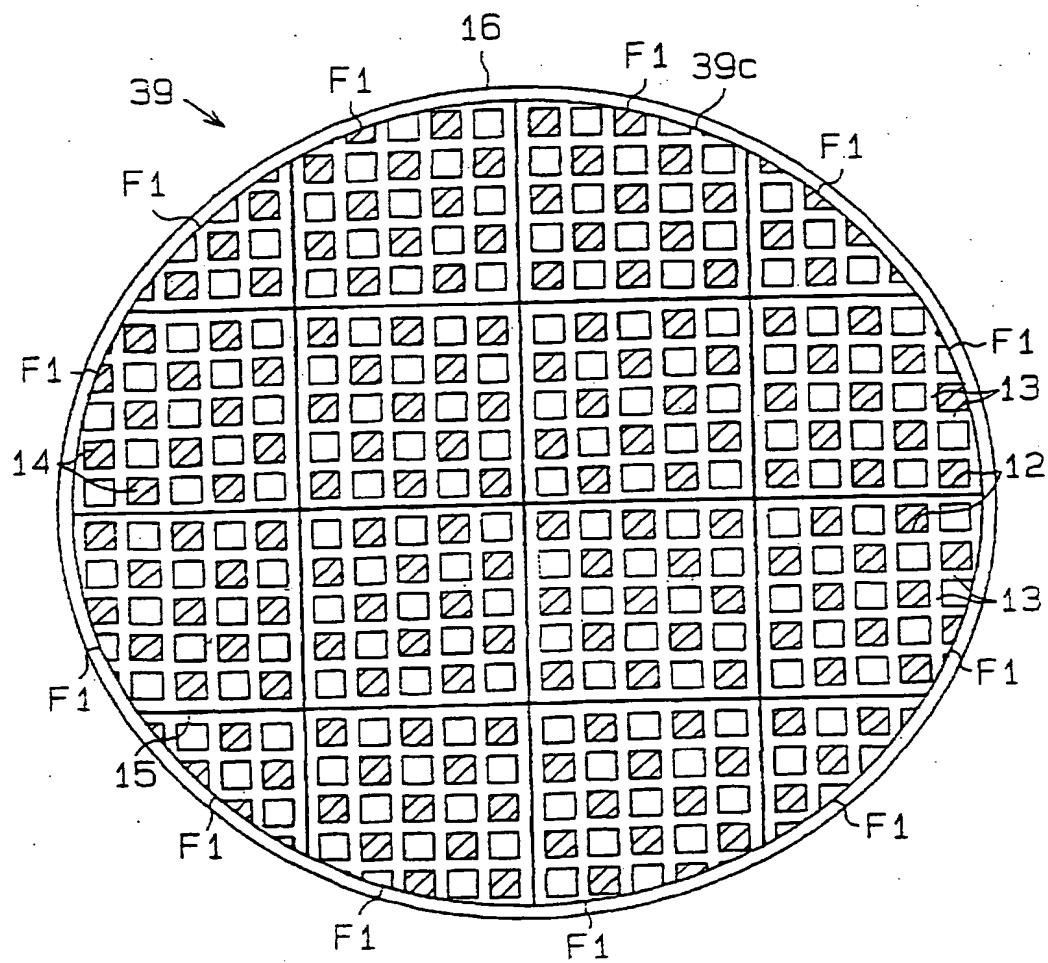
**Fig.11**



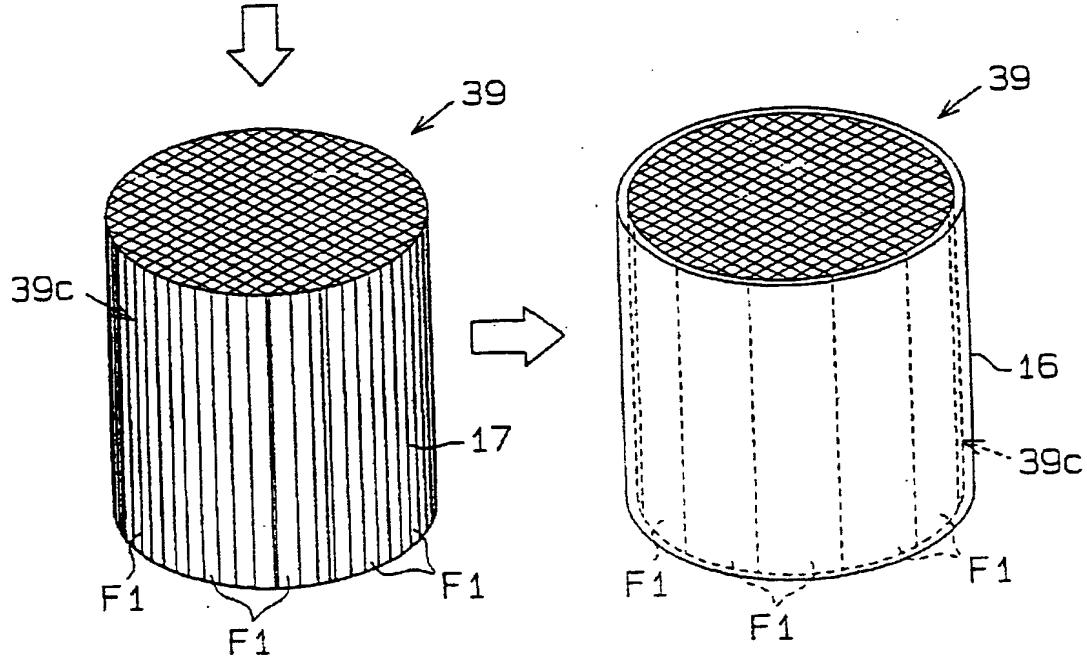
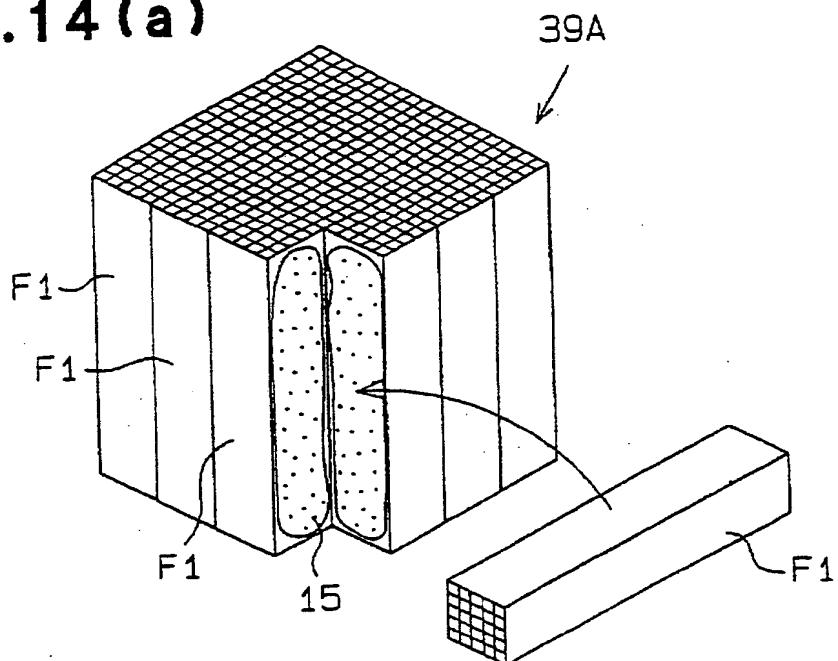
**Fig.12**



**Fig.13**



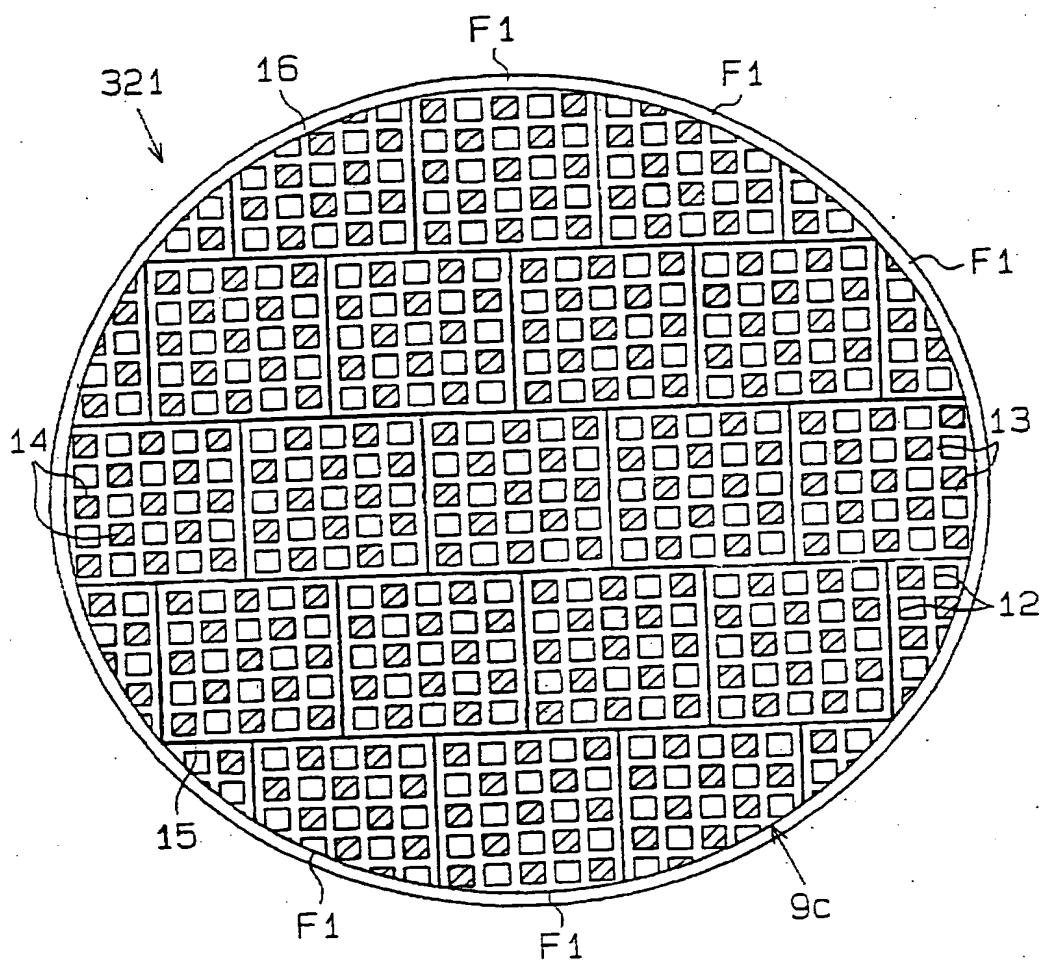
**Fig.14(a)**

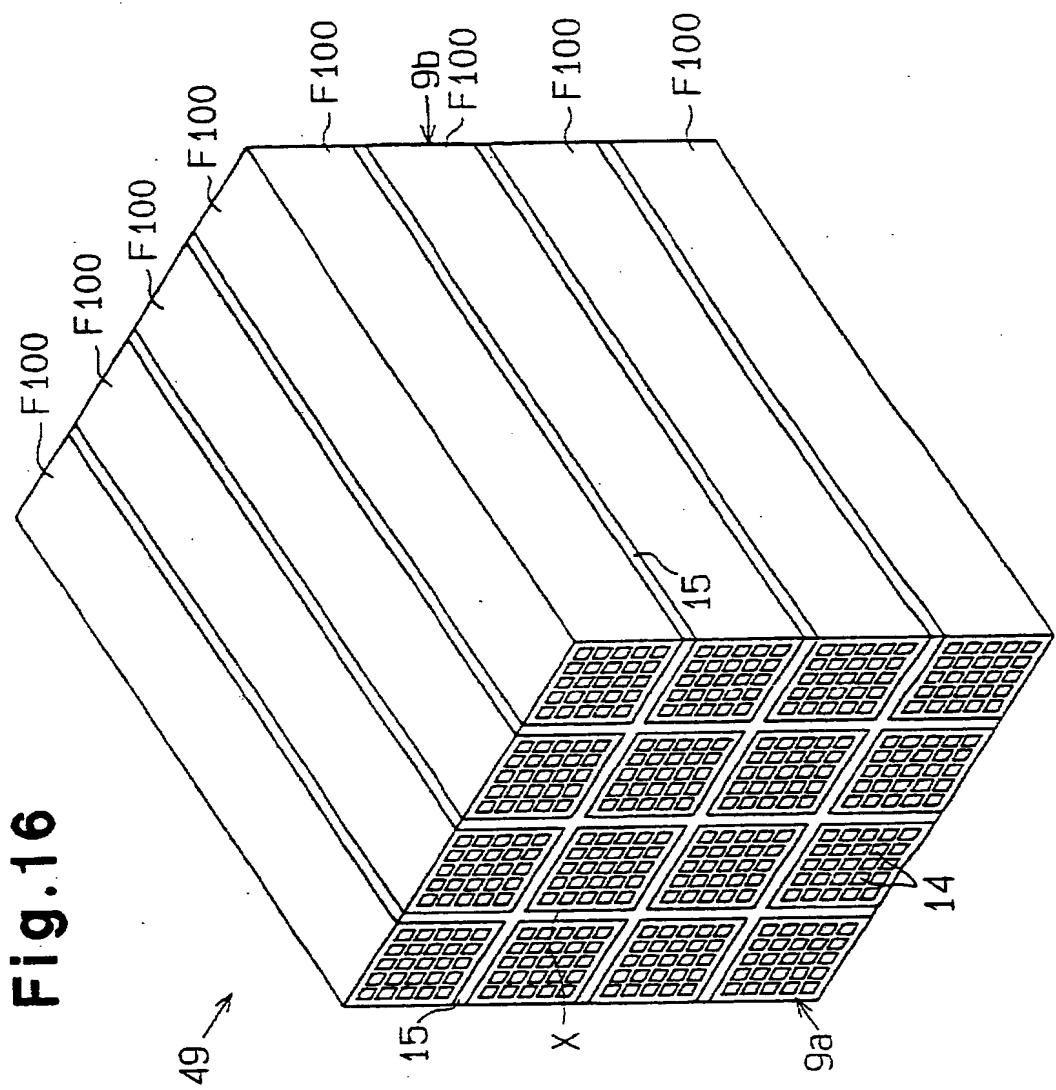


**Fig.14(b)**

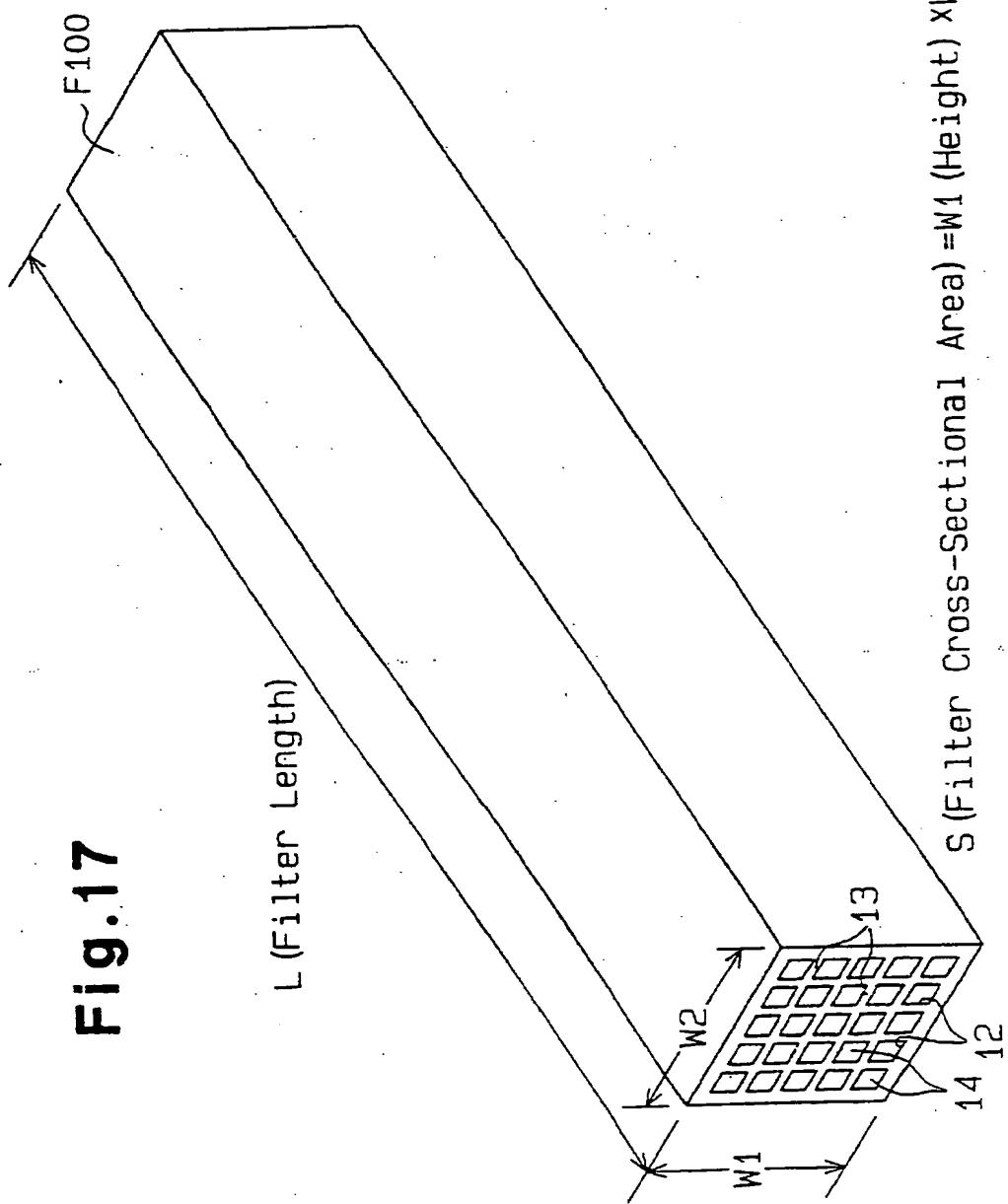
**Fig.14(c)**

**Fig.15**

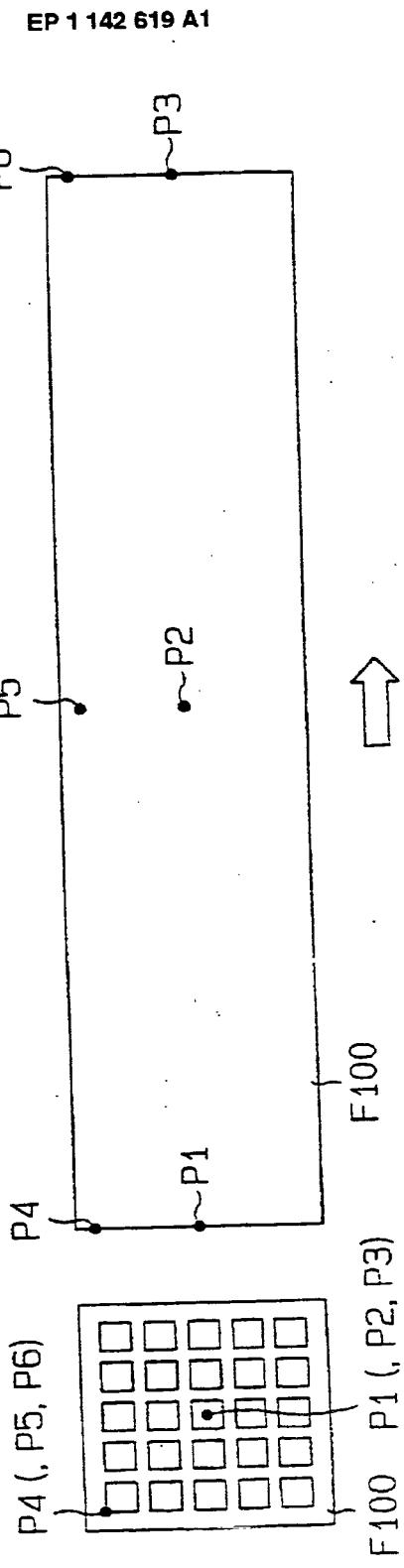




**Fig.17**

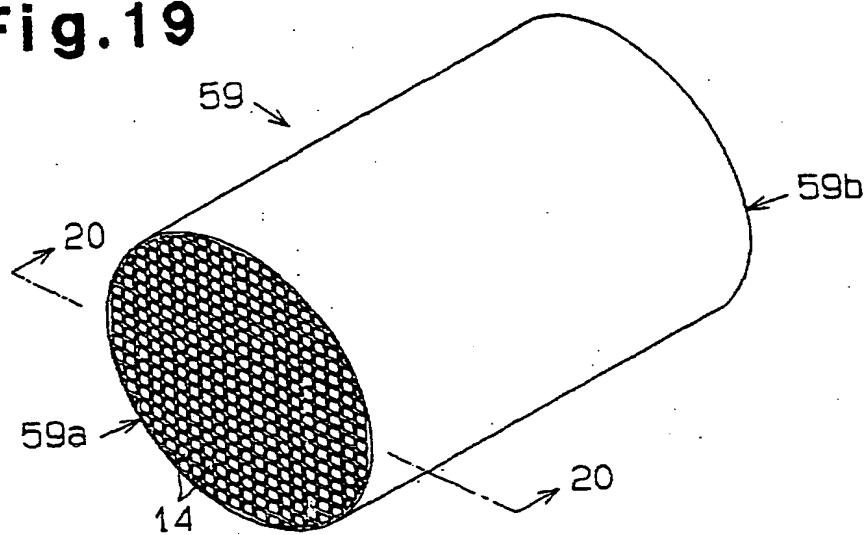


**Fig. 18 (a)**



**Fig. 18 (b)**

**Fig.19**



**Fig.20**

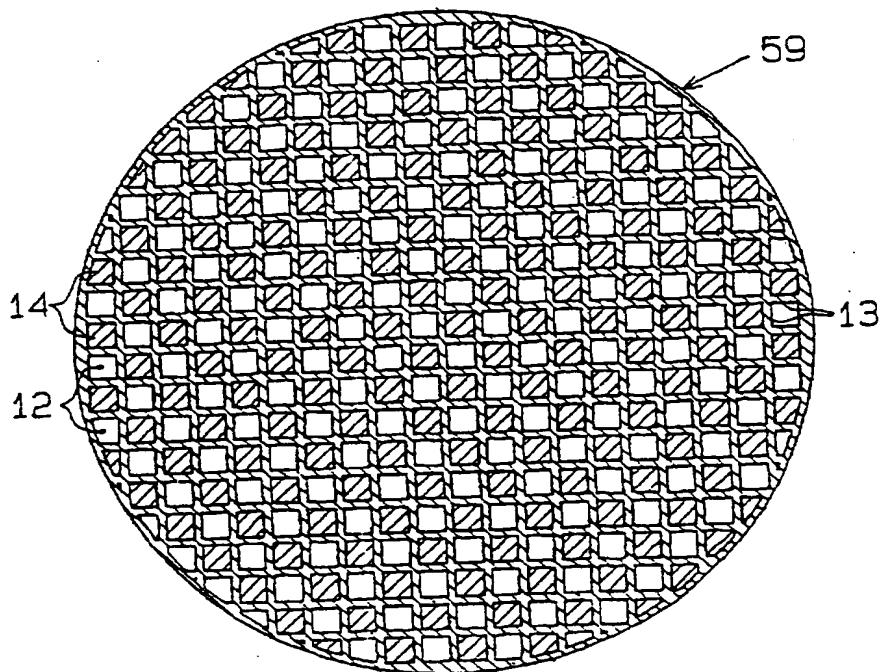
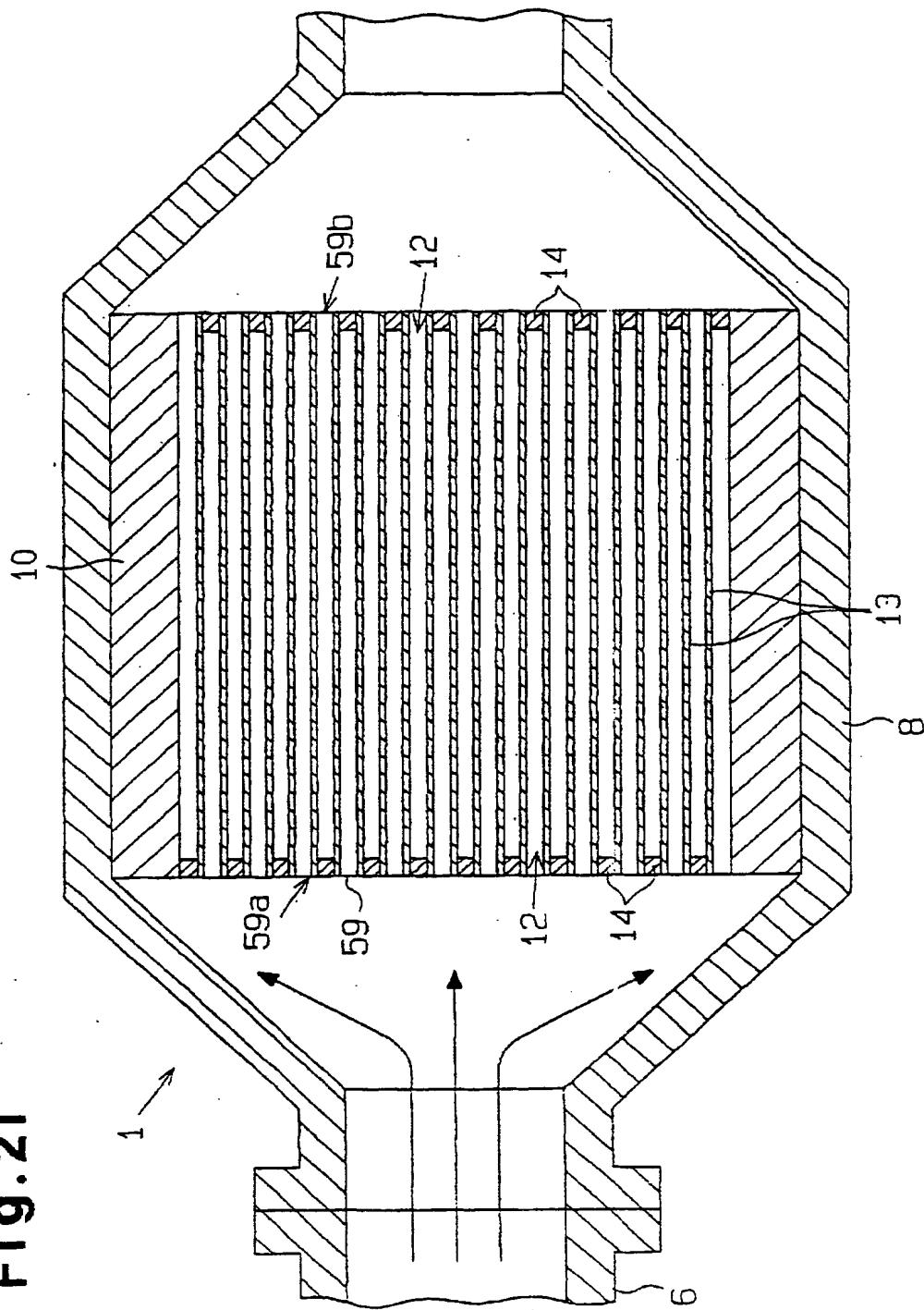
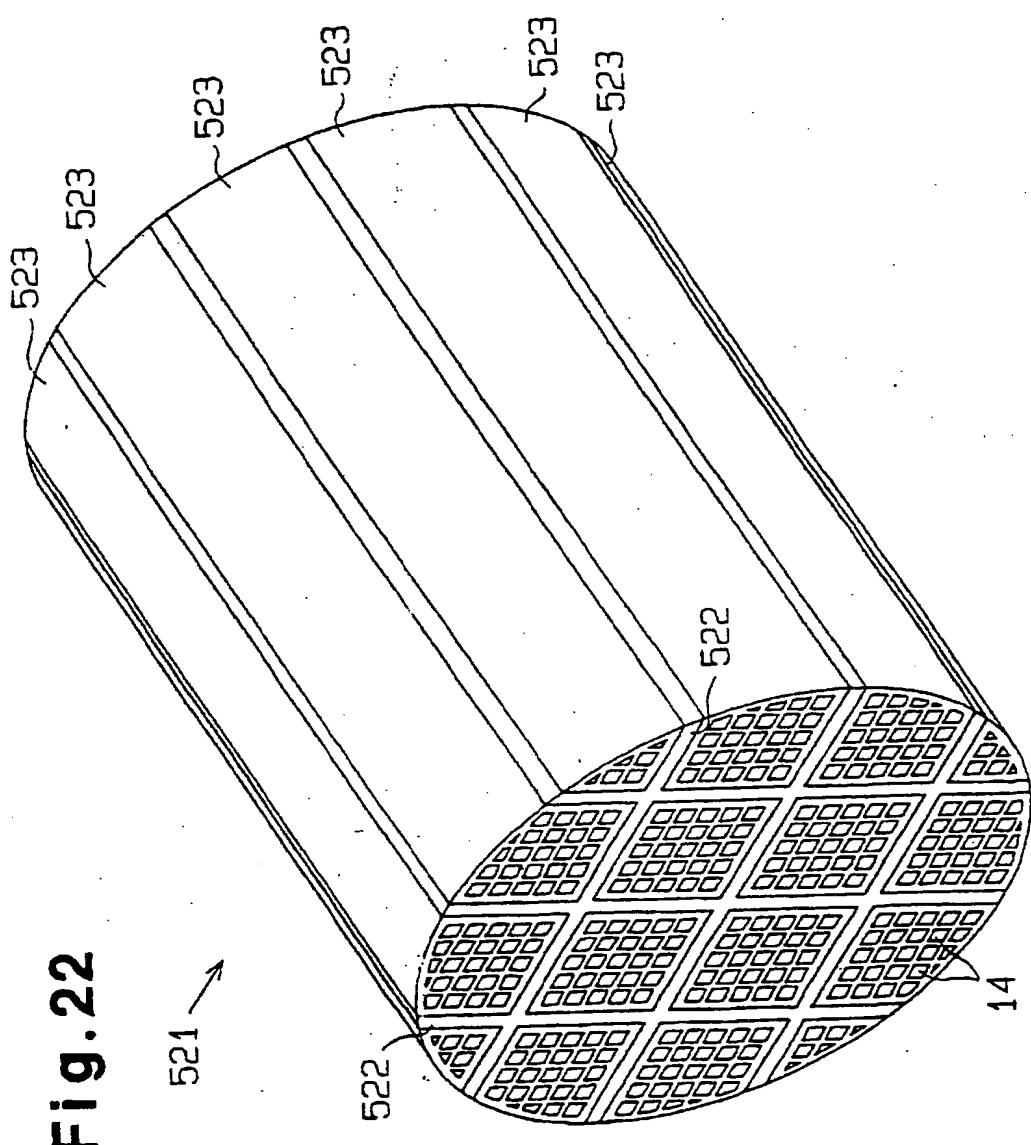


Fig. 21





INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP00/06599
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> Int.Cl <sup>7</sup> B01D39/20		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>7</sup> B01D39/20		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Tokoku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Keisai Koho 1996-2000		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) WPI (DIALOG)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US, 5914187, A (Ibiden Co., Ltd.), 22 June, 1999 (22.06.99), See the entire document & JP, 8-28246, A Full text & NO, 97025203, A1 & EP, 816065, A1	1-4, 10-14, 17
A	JP, 11-114339, A (NGK INSULATORS, LTD.), 27 April, 1999 (27.04.99), Claims; Fig. 1 (Family: none)	5-9, 15, 16, 18-27
A	US, 5853444, A (Thomas Josef Heimbach GmbH & Co.,), 29 December, 1998 (25.12.98), Claims & JP, 10-15323, A Claims & EP, 796830, A1	1-27
EA	JP, 2000-210517, A (NGK INSULATORS, LTD.), 02 August, 2000 (02.08.00), Claims; Fig. 3 (Family: none)	1-27
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "T" document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 06 November, 2000 (06.11.00)	Date of mailing of the international search report 14 November, 2000 (14.11.00)	
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer	
Faximile No.	Telephone No.	

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)